

***“CARACTERIZACIÓN MICROESTRUCTURAL
DE LA ZONA DE INTERACCIÓN CRECIDA POR
INTERDIFUSIÓN EN ALEACIONES BINARIAS
U(Mo) Y Al(Si)”***

**CARRERA: ESPECIALIZACIÓN EN REACTORES
NUCLEARES Y SU CICLO DE COMBUSTIBLE**

Alumno: Maximiliano Bertón Albornoz
Directora: Marcela I. Mirandou
Co-directora: Ana María Fortis

Marzo 2017

RESUMEN

Los combustibles de alta densidad de uranio para reactores de investigación se desarrollan con el objetivo de disminuir el enriquecimiento y contribuir a la no proliferación de armas nucleares. Un combustible candidato es el constituido por la aleación uranio-molibdeno (U(Mo)) disperso en una matriz de aleaciones de aluminio Al(Si). En el proceso de fabricación se produce la interacción entre el U(Mo) y la matriz generando una zona de interacción (ZI) con ciertas propiedades que pueden ser desfavorables para el comportamiento en servicio. En este trabajo se caracteriza microscópicamente esa ZI para cuatro diferentes aleaciones de aluminio con silicio observándose que ésta presenta crecimientos abruptos en posiciones adyacentes al U(Mo) en descomposición celular mientras que en las zonas donde no hay descomposición se observa un crecimiento más controlado. El agregado de Si al Al que conforma la matriz tiene dos efectos: por un lado el crecimiento de forma más controlada de la ZI entre la aleación combustible y matriz, y por otro que al momento de la fabricación de un elemento combustible (EC) el fabricante se pueda independizar de la descomposición de la fase γ U(Mo) con el aumento del Si agregado a la matriz. Además, se establecen las tendencias en morfología y composición de las ZI para las mismas y se comparan con miniplacas fabricadas en la planta de fabricación de elementos combustibles (ECRI) concluyendo que el comportamiento de los pares de difusión y las miniplacas combustibles es el mismo y esto hace al trabajo atractivo ya que podría ser de gran ayuda para la fabricación de EECC con mayores densidades de uranio a las de hoy en día y para solucionar posibles inconvenientes en el proceso.

ÍNDICE

RESUMEN	1
1. INTRODUCCIÓN	3
1.1. Reactores de investigación y producción de radioisótopos	3
1.1.1. Situación Argentina	3
1.1.2. Reactores nucleares de investigación argentinos	3
1.1.3. Producción de radioisótopos en Argentina	5
1.2. Combustibles para reactores de investigación	5
1.2.1. Breve reseña histórica	5
1.2.2. Búsqueda de combustibles de mayores densidades	6
1.2.3. Marco teórico en el que se encuadra esta tesina	8
1.3. Diagramas de fase binarios U(Mo) y Al-Si	8
1.3.1. U-Mo	8
1.3.2. Al-Si	9
2. DESARROLLO EXPERIMENTAL	11
2.1. Obtención y acondicionamiento de las aleaciones estudiadas	11
2.1.1. Materias primas utilizadas y elaboración de las aleaciones ..	11
2.1.2. Elaboración de los pares de difusión	13
2.2. Equipamiento e instalaciones	14
2.2.1. Microscopía óptica (OM por sus siglas en inglés)	14
2.2.2. Microscopía electrónica de barrido y espectroscopía dispersiva en energía (SEM y EDS respectivamente por sus siglas en inglés)	15
2.2.3. Laboratorio LABUAM	15
2.3. Preparación de las muestras para las técnicas utilizadas	17
2.3.1. Inclusión	17
2.3.2. SEM y EDS	18
3. RESULTADOS	19
3.1. Caracterización microestructural de los materiales de partida previo a la fabricación de los pares de difusión	19
3.1.1. U(Mo)	19
3.1.2. Aleaciones Al(Si)	20
3.2. Caracterización microestructural después del tratamiento térmico de interdifusión	22
3.2.1. U(Mo)	22
3.2.2. Aleaciones Al(Si)	22
3.3. Zonas de Interacción y Zona Libre de Precipitados	24
3.3.1. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-0.6%Si	24

3.3.2. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-2%Si.....	27
3.3.3. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-5.2%Si.....	31
3.3.4. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-7.1%Si.....	33
4. DISCUSIÓN.....	37
4.1. Comparación de las ZI crecidas por interdifusión entre la aleación U(Mo) y las aleaciones Al(Si).....	37
4.2. Comparación con resultados obtenidos en miniplacas combustibles.....	39
5. CONCLUSIONES Y TRABAJOS A FUTURO.....	41
5.1. Conclusiones.....	41
5.2. Trabajos a futuro.....	41
6. BIBLIOGRAFÍA.....	42

1. INTRODUCCIÓN

1.1. Reactores de investigación y producción de radioisótopos [1]

1.1.1. Situación Argentina [2,3]

La Argentina ha desarrollado la ingeniería de reactores de investigación y de producción de radioisótopos y la de su ciclo de combustible asociado, construyendo y operando estos reactores, y exportando algunos de los mismos a Perú, Argelia, Egipto y Australia. En los últimos veintiocho años, siete nuevos reactores de investigación entraron en operación en todo el mundo: RP-10 (1989, PERU, 10MW), NUR (1989, ARGELIA, 1 MW), HANARO (1995, Rep. COREA, 30 MW), ETRR-2 (1997, EGIPTO, 22 MW), FRM-2 (2004, ALEMANIA, 20 MW), OPAL (2006, AUSTRALIA, 20 MW). Cuatro de ellos fueron construidos y puestos en marcha por Argentina (CNEA/ INVAP) y de los tres más modernos del mundo, dos fueron construidos por CNEA/INVAP (Argentina) y el restante por SIEMENS (Alemania) Por lo tanto, en el país se cuenta actualmente con la experiencia y capacidad para el diseño, construcción, puesta en marcha y operación segura y eficiente de reactores de investigación y de producción de radioisótopos y con la tecnología e instalaciones necesarias para el procesamiento y provisión de estos últimos para su uso en el mercado para las aplicaciones médicas y tecnológicas correspondientes.

1.1.2. Reactores nucleares de investigación argentinos [3]

La República Argentina cuenta con seis reactores de investigación situados en distintas ciudades del país. A continuación se detallan las principales características y usos de cada uno de ellos:

RA-1: Se encuentra en el Centro Atómico Constituyentes de la CNEA en la Provincia de Buenos Aires. Es el primer reactor nuclear argentino y primero en operar en Latinoamérica. En él se produjeron los primeros radioisótopos nacionales para uso medicinal e industrial. A partir de la experiencia y conocimientos adquiridos, se estuvo en condiciones de concretar otros emprendimientos de mayor envergadura como los Reactores nacionales RA-3 y RA-6 y los exportados a Perú, Argelia y Egipto. Asimismo, fue pionero en la formación de recursos humanos adecuados para encarar los proyectos de instalación de las dos primeras centrales nucleares argentinas de potencia.

Este reactor tiene una potencia autorizada de 40 kW térmicos siendo su flujo térmico máximo de 7×10^{11} n/cm² s. Es del tipo tanque abierto, con núcleo de U enriquecido al 20% en ²³⁵U, reflejado por grafito y moderado y refrigerado por agua liviana desmineralizada. Los elementos combustibles son barras cilíndricas de UO₂ encapsulado en Al. La refrigeración se efectúa mediante la circulación ascendente de agua desmineralizada forzada por bombas. Actualmente se lo utiliza en ensayos experimentales e irradiación

de muestras para mediciones de parámetros nucleares, calibración de equipos de radioprotección, actividades docentes y de divulgación e irradiaciones de muestras para determinar el daño por radiación en diversos materiales.

RA-0 y RA-4: Se encuentran ubicados en la Universidad Nacional de Córdoba y de Rosario respectivamente. Ambas instalaciones fueron cedidas en calidad de préstamo por la CNEA para que esas instituciones los operen con la finalidad de formar profesionales en el campo nuclear y desarrollar una conciencia nacional en la aplicación de los usos pacíficos de la energía nuclear. Actualmente se destacan las investigaciones básicas y aplicaciones tanto en las materias de grado como en las de posgrado para maestrías y doctorados.

RA-6: Esta instalación está ubicada en el Centro Atómico Bariloche de la CNEA en la Provincia de Río Negro. Al igual que el resto de los reactores argentinos es del tipo pileta y es utilizado por los científicos y por estudiantes para la investigación y el desarrollo en diversas aplicaciones de la rama nuclear. En el marco del proyecto de cambio de núcleo e incremento de potencia de este reactor, el día 20 de enero de 2009 fue puesto en estado crítico con su nueva configuración utilizando combustibles de siliciuro de uranio de bajo enriquecimiento (menos del 20% ^{235}U). Estas características convierten al RA-6 en el primer reactor argentino que funciona con este tipo de combustibles.

RA-8: Es una facilidad ubicada en el Centro Tecnológico de Pilcaniyeu en la Provincia de Río Negro. Está diseñada para realizar experimentos relacionados con el diseño del reactor CAREM (primer reactor de potencia argentino). El diseño de un reactor avanzado requiere de muchas experiencias de tipo nuclear y termohidráulico. En el RA-8 se trata de reproducir una porción del núcleo del reactor en el que se ajustan los distintos parámetros que definirán la disposición, la composición y el rendimiento del combustible nuclear.

RA-3: Se encuentra ubicado en el Centro Atómico Ezeiza de la CNEA en la Provincia de Buenos Aires. Las dos actividades principales son la experimentación y la producción de radioisótopos. Su flujo neutrónico es de 10^{14} n/cm² s y su potencia térmica es de 10 MW. El reactor está constituido por un recipiente de acero inoxidable dentro del cual se encuentra el núcleo. El combustible es U_3O_8 enriquecido al 20% en ^{235}U .

RA-10: Este reactor, actualmente en construcción, es un proyecto ambicioso dentro de los planes de la Comisión Nacional de Energía Atómica, diseñado como un reactor multipropósito cuyas misiones fundamentales son la producción de radioisótopos, la producción de haces neutrónicos y, como MTR (Materials Testing Reactor), una facilidad para el ensayo de materiales y combustibles. Estará ubicado también en un predio próximo al CAE. El combustible será U_3Si_2 enriquecido al 20% en ^{235}U y su potencia térmica de 30 MW.

1.1.3. Producción de radioisótopos en Argentina [3]

Desde hace más de 40 años la CNEA produce, por medio de sus reactores de investigación y aceleradores de partículas, un alto porcentaje de los radioisótopos que son empleados en la República Argentina en áreas tan diversas como la medicina, la industria y la investigación. Uno de ellos, el ^{99}Tc , producto del decaimiento radiactivo del ^{99}Mo (producto de fisión del ^{235}U), es el de mayor empleo en medicina nuclear. La República Argentina es uno de los pocos países del mundo que cuenta con la tecnología para producir ^{99}Mo por fisión de U. Desde 1985 la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) producía ^{99}Mo por fisión de UAE (uranio altamente enriquecido) (^{235}U al 90%), contenido en blancos que son irradiados en el reactor RA-3, abasteciendo las necesidades del mercado local y generando a su vez saldos exportables. La preocupación mundial relativa al uso de UAE, ha conducido al corte definitivo del suministro de este material nuclear por parte de los países proveedores. La imposibilidad de abastecimiento externo de UAE, sumado al progresivo agotamiento del inventario existente, ha obligado a la CNEA al uso de ULE (uranio levemente enriquecido) (^{235}U menor al 20%). Así, durante 1999 se encaró con éxito, en la División Elementos Combustibles para Reactores de Investigación (ECRI) del Departamento Combustibles Nucleares del CAC, el desarrollo de blancos de aluminuro de uranio de bajo enriquecimiento, los que, a fin de ser calificados, fueron sometidos a ensayos de irradiación y posterior procesamiento, con resultados altamente satisfactorios. Estos blancos son adecuados para cubrir las necesidades de ^{99}Mo que demanda el mercado nacional y exportar a países como Brasil. Con estos resultados la República Argentina se convirtió en el primer país, entre los productores de ^{99}Mo por fisión, en desarrollar su propio blanco con uranio de bajo enriquecimiento, cumpliendo con los compromisos internacionales en cuanto a reducción de enriquecimiento.

1.2. Combustibles para reactores de investigación

1.2.1. Breve reseña histórica [4]

El elemento principal del programa estadounidense “Átomos para la paz”, anunciado por su presidente Eisenhower en 1953, fue la provisión a diversos países de reactores de investigación y de los combustibles para su operación. Estos reactores de investigación utilizaban inicialmente combustibles fabricados con ULE ($^{235}\text{U} < 20\%$). Sin embargo, la demanda de potencias específicas y flujos neutrónicos más altos se incrementaron junto con los avances de la tecnología nuclear y surgió la necesidad de combustibles con cargas físeles más elevadas. Es así que los reactores de investigación de alta potencia comenzaron a utilizar combustibles fabricados con UAE. Esta situación generó gran preocupación por la posibilidad de utilizar el UAE para la fabricación de armas nucleares. En agosto de 1978, el Departamento de Energía de los Estados Unidos (DOE) creó el programa Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) cuyo principal objetivo es desarrollar la tecnología necesaria para minimizar o

eventualmente eliminar el uso de UAE en aplicaciones civiles en todo el mundo.

1.2.2. Búsqueda de combustibles de mayores densidades [4,5,6,7]

Para 1978, los principales combustibles usados en los reactores de diseño occidental eran disperso tipo placa con núcleo combustible de UAl_x (1.7 gU/cm^3) y U_3O_8 (1.3 gU/cm^3) enriquecidos al 93% en ^{235}U . Una placa de combustible disperso consta de un núcleo formado por una mezcla de polvos de la aleación combustible y de aluminio, esto último para lograr una buena transferencia térmica hacia el refrigerante. Esta mezcla se encierra entre dos placas de aleación de aluminio para impedir la salida de los fragmentos de fisión hacia el exterior del conjunto. Los esfuerzos iniciales del RERTR se basaron en tratar de incrementar la carga de las partículas físis en los combustibles antes mencionados. Como resultado de este esfuerzo se lograron combustibles dispersos utilizando ULE con concentraciones de U de 2.3 gU/cm^3 para el $UAl_x\text{-Al}$, 3.2 gU/cm^3 para $U_3O_8\text{-Al}$ y 3.7 gU/cm^3 para $UZrH_x$. También estaban bajo desarrollo los combustibles base U_3Si , U_3Si_2 y los intermetálicos U_6Me (Me – metales de transición). Para el año 1982 los ensayos con U_3Si comenzaron a fallar y fueron retirados de los programas de Alemania, Francia y Estados Unidos. Por otro lado, los combustibles dispersos $U_3Si_2\text{-Al}$, con densidades de 4.8 gU/cm^3 fueron probados y demostraron ser muy estables bajo irradiación. Desde 1988, el U_3Si_2 ha sido usado para la conversión o en la puesta en marcha de más de 30 reactores de investigación.

Por otro lado, para la conversión de los reactores de investigación de muy alta potencia que habían comenzado a operar a mediados de 1990, se requerían combustibles con densidades en el rango de $8\text{-}10 \text{ gU/cm}^3$. Con este objetivo, en 1996 el programa RERTR vio resurgir su financiación para desarrollar combustibles que pudieran satisfacer estos requerimientos pero tratando de utilizar los métodos e infraestructuras ya existentes y conocidas. Esto marcó un límite de carga práctico superior de aproximadamente 55% en volumen de la aleación de uranio, por lo cual debían utilizarse compuestos de uranio con densidades de al menos 14.5 gU/cm^3 . Dos tipos de combustibles que cumplían este criterio de densidad se encontraban disponibles: aleaciones de uranio metálico con bajo contenido de aleantes y los intermetálicos, tipo U_6Me , de alta densidad. Entre estos últimos, U_6Fe y U_6Mn habían demostrado un comportamiento pobre bajo irradiación lo cual llevaba a pensar que el resto de este tipo de intermetálicos se comportaría de la misma manera. Se puso entonces el énfasis en los combustibles de aleaciones metálicas de uranio. Agregando el requerimiento extra de que la fase γU (estable a alta temperatura y con buen comportamiento bajo irradiación) debía poder retenerse en forma metaestable a temperatura ambiente, sólo $U\text{-Nb-Zr}$ y $U\text{-Mo}$ quedaron como posibles candidatas.

Dada la poca información existente respecto del comportamiento bajo irradiación de estos combustibles metálicos en el rango de alto quemado y baja temperatura, requerido para los reactores de investigación, se planificaron una serie de ensayos de irradiación. Los dos puntos importantes que se deseaban estudiar eran la estabilidad de la fase γU en función de la

cantidad de aleante agregado al uranio y la resistencia de estas aleaciones a interactuar con el aluminio de la matriz. Este último aspecto interviene decisivamente en el comportamiento térmico de la placa combustible. Un importante esfuerzo internacional dio origen a numerosos programas de irradiación. Estos ensayos mostraron que, para baja temperatura de irradiación y bajo quemado, las aleaciones de U(Mo) con al menos 6 % en peso de Mo, exhibían un comportamiento estable bajo irradiación. Esto resultó sumamente promisorio en el desarrollo de estos combustibles de alta densidad. A medida que los ensayos sobre las aleaciones de U(Mo) fueron avanzando, se pudo ver que cuando la temperatura de irradiación era más elevada, la zona de interacción (ZI), formada por la interdifusión entre la aleación U(Mo) y el Al de la matriz, crecía rápidamente provocando una retroalimentación positiva de temperatura dentro del combustible. Es decir, a medida que se genera la ZI, se forma un compuesto de baja conductividad térmica, la extracción calórica decrece, la temperatura aumenta en el combustible y la reacción se ve aún más favorecida. Para el año 2004 debió detenerse el experimento de irradiación más importante que se encontraba en curso (experimento francés FUTURE) debido a las fallas en el combustible ensayado. Se realizaron observaciones metalográficas en una zona en donde la placa mostró mayor hinchado (Figura 1) y se vio que era debido a la formación de grandes poros interconectados dentro del combustible. Los poros pequeños, en donde se alojan los gases de fisión, son comunes en todo tipo de materiales combustibles pero en este caso se comprobó que muchos de ellos se acumulaban entre la zona de interacción y el Al de la matriz generando poros de gran tamaño. Esta falla fue apareciendo en los distintos experimentos de irradiación independientemente de la geometría del elemento combustible.

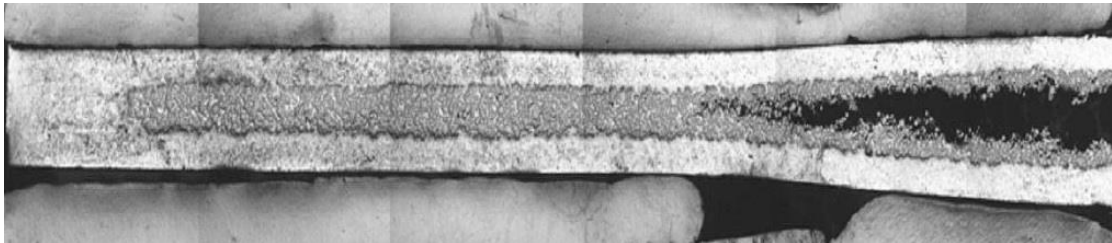


Figura 1: Placa hinchada, ensayo de irradiación experimento FUTURE.

Hofman y col., en 2004, propusieron como explicación que los compuestos de uranio que se forman en la ZI sufren de amorfización inducida por fisión comportándose entonces como fluidos por lo cual hay una importante disminución de la viscosidad con el consecuente incremento de la movilidad de los gases de fisión dentro de la ZI. Según estos mismos autores, las teorías de aleaciones muestran que los elementos del grupo IV A en la tabla periódica (por ejemplo Si, Ge y Sn) deberían fortalecer las uniones en los compuestos U-Al. Surgen entonces numerosas líneas de investigación en el mundo cuyo objetivo principal es estudiar modificaciones en la ZI U(Mo)/Al debido a la presencia de estos aleantes.

1.2.3. Marco teórico en el que se encuadra esta tesina

Dentro del programa de calificación de la aleación U(Mo), es de vital importancia el conocimiento y control de la ZI entre esta aleación combustible y la matriz. Diversos laboratorios del mundo se han abocado a esta problemática surgiendo, como un resultado significativo, que el agregado de Si al Al de la matriz sería una posible solución para evitar la porosidad e hinchado antes mencionados. De todos los resultados obtenidos hasta el momento, es de destacar que las características de la ZI dependen fuertemente del estado cristalográfico de la aleación U(Mo).

Dentro de este panorama es importante conocer el efecto sobre las características generales de la ZI debido al agregado de concentraciones incrementales de Si en el Al. En particular en esta tesina se presenta la ZI crecida por interdifusión en pares de difusión fabricados con la aleación U-7% en peso Mo (de ahora en más llamada únicamente U(Mo)) y cuatro aleaciones binarias Al-Si con concentraciones de Si entre 0.6 y 7.1% en peso.

1.3. Diagramas de fase binarios U(Mo) y Al-Si

En esta sección se presentarán los diagramas de fases binarios de las dos aleaciones utilizadas en el armado de los pares de difusión.

1.3.1. U-Mo

Este diagrama (Figura 2) será importante tener en cuenta ya que el agregado de molibdeno (en porcentajes mayores al 6% en peso, como es el caso de la aleación fabricada y utilizada para la construcción de los pares) tiene la funcionalidad de conservar la fase y aún a temperatura ambiente de forma metaestable, por enfriamiento rápido.

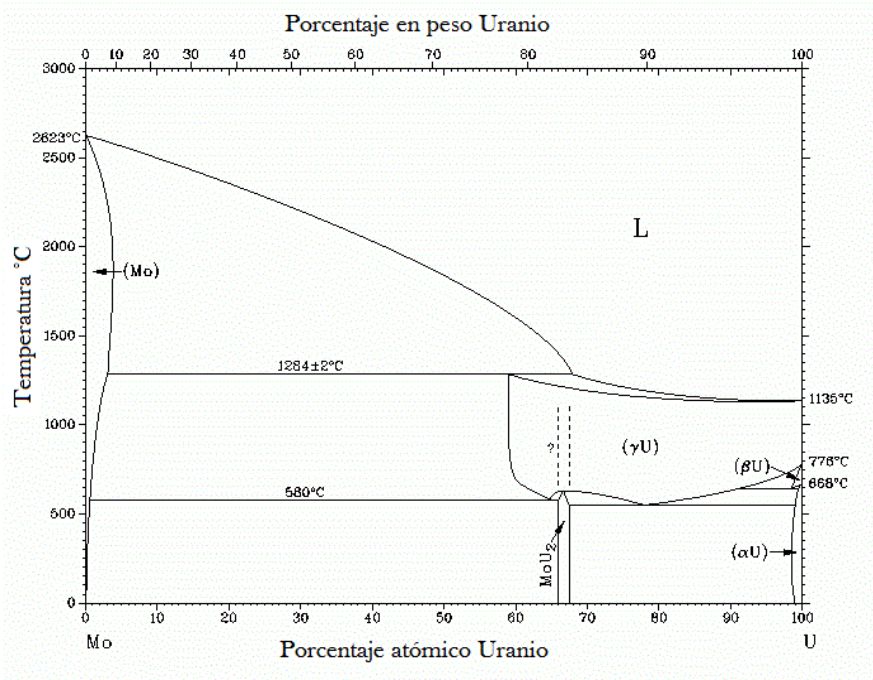


Figura 2: diagrama de fases binario U-Mo.

Descomposición celular de la fase γU

Uno de los mecanismos más comunes de descomposición de la fase $\gamma U(Mo)$, retenida en forma metaestable, por efecto de tratamientos térmicos a temperaturas menores que la eutéctide y mayores que $375^{\circ}C$, es el de la reacción tipo celular con morfología laminar. Esta reacción recibe este nombre debido a la apariencia del producto resultante.

Esta descomposición comienza principalmente en los bordes de grano de la fase $\gamma U(Mo)$ y en menor cantidad en inclusiones llegando, luego de un determinado tiempo, a consumir por completo la fase γ de origen. Las láminas que componen las celdas corresponden, alternadamente, a la fase αU y fase γU enriquecida en Mo. El espaciado interlaminar decrece rápidamente con la disminución de la temperatura del tratamiento térmico. El inicio temporal de la descomposición o el tiempo que las soluciones sólidas en fase $\gamma U(Mo)$ permanecen como tal a temperatura ambiente, depende de la temperatura del tratamiento térmico aplicado y de la concentración del Mo. Existen para los diversos casos diagramas Temperatura, Tiempo y Transformación (TTT) que permiten estimar el rango de metaestabilidad.

1.3.2. Al-Si

Y el diagrama de Al-Si (Figura 3) será importante ya que es preciso ver cuál es la aceptación de Si en el Al y así poder aseverar que, a partir de una concentración del orden del 1% en peso ya se pueden observar precipitados de Si en la matriz de Al y que por debajo de ese porcentaje el Si permanece en solución sólida.

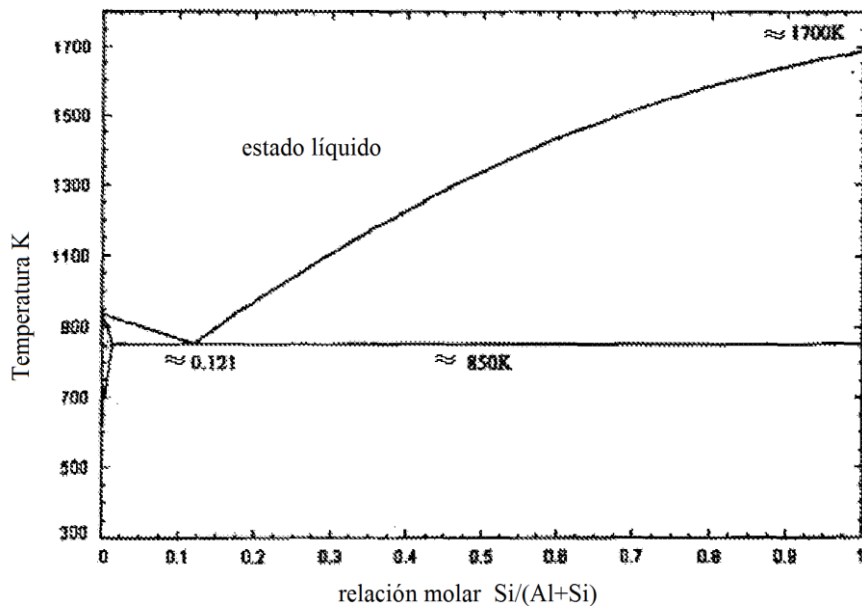


Figura 3: diagrama de fases binario Al-Si.

2. DESARROLLO EXPERIMENTAL

2.1. Obtención y acondicionamiento de las aleaciones estudiadas

2.1.1. Materias primas utilizadas y elaboración de las aleaciones

Las materias primas utilizadas para elaborar las aleaciones en estudio fueron las siguientes: los aleantes Al, Mo y Si fueron de alta pureza ($\geq 99,9\%$) y el U utilizado es empobrecido (0,2% en peso ^{235}U) de 98,5% de pureza.

2.1.1. a) Aleaciones de Al(Si)

Las aleaciones de Al(Si) se fabricaron en un horno de arco con electrodo no consumible de W, bajo atmósfera de Ar y crisol de Cu. Para lograr una buena integración de los elementos, los botones se refundieron cuatro veces y el resultado fueron seis botones de aproximadamente 20g cada uno. Las concentraciones en peso de Si utilizadas fueron 0.6%, 2%, 4%, 5.2%, 6% y 7.1%. Los botones se pueden ver en la Figura 4.

Una vez obtenidos los botones se corta una porción de cada uno para el estudio de la microestructura As-Cast (de fundición, AC a partir de ahora), el resto se lamina en caliente (siete pasadas de laminación a 480°C), se vuelve a tomar una muestra y a lo restante se le hace un tratamiento térmico final para luego dejarse enfriar en aire, y también se toma una muestra para su estudio. El proceso de laminación tiene como principal objetivo transformar a los botones en láminas plano-paralelas permitiendo un mejor aprovechamiento del material, en la Figura 5 se puede ver el resultado del mismo. Además, este proceso termomecánico promueve la recristalización del material con su consiguiente evolución a una condición de mayor equilibrio. El tratamiento térmico final se realiza a la misma temperatura a la que luego se tratarán los pares de difusión, 550°C , con el fin de evitar evoluciones propias de las aleaciones Al(Si) durante el proceso de interdifusión. En la Tabla 1 se muestra cuáles fueron los parámetros utilizados para llevar a las aleaciones de Al(Si), que luego formarían parte de los pares de difusión, a las condiciones microestructurales de trabajo.



Figura 4: botones de Al(Si) luego del proceso de fabricación en el horno de arco.

Paso	Temperatura [°C]	Tiempo [minutos]	Espesor obtenido [mm]
1	480	15	7.2
2	480	25	6.7
3	480	15	5.7
4	480	15	4.8
5	480	15	3.9

Tabla 1: temperatura, tiempo y espesor obtenido en los cinco pasos de laminación.

Una vez finalizado el proceso de laminación, se obtuvieron láminas plano-paralelas de un espesor de 3.8mm. Ver Figura 5.



Figura 5: láminas de Al(Si) luego del proceso de laminación, láminas plano paralelas de 3.8mm de espesor.

2.1.1. b) Aleación U(Mo)

La aleación U(Mo) se fabricó con la misma metodología que la de las aleaciones de Al pero en este caso, además de que el producto se refundió seis veces y el resultado fue un botón de 201.8g, también el enfriamiento fue distinto dejándose enfriar directamente en el horno de arco. A esta aleación no se le realizó ningún proceso de homogeneización en composición con el

objeto de que la misma se asemeje lo mejor posible a la condición de fabricación de un elemento combustible (EC en adelante).

2.1.2. Elaboración de los pares de difusión

Los materiales anteriormente mencionados se cortaron con sierra lenta de diamante. Los criterios utilizados para la elección de los cortes fueron: el menor desperdicio del material posible y la semejanza en tamaño de los componentes del par.

Dada la importancia de un buen contacto entre los componentes del par, las muestras deben prepararse de modo de obtener superficies especulares. Para esto, en primer lugar se realiza un desbaste con papeles abrasivos de granulometría decreciente: 220, 320, 400, 600 y 1500. En segundo lugar, se realiza un pulido final con pasta de diamante de $6\mu\text{m}$ y $1\mu\text{m}$ en paños de nylon. Una vez que las muestras están pulidas se procede a armar los pares de difusión.

Se toma una prensa de acero inoxidable, cuya función es que las caras de las muestras estén completamente en contacto, y sobre la base de la misma, se colocan los componentes del par en el orden que se describe a continuación: lámina de tantalio, aleación Al(Si), aleación U(Mo), aleación Al(Si) con concentración de Si distinta a la anterior y otra lámina de tantalio. Las láminas de Ta se colocan para evitar que haya interdifusión entre la presa y las aleaciones de Al(Si). Finalmente, se cierra la prensa ajustándola con tuercas. Con esta metodología se fabricaron dos pares de difusión que serán estudiados en esta tesina, un primer par con las aleaciones que contienen 0.6% y 7.1% de Si y un segundo par con las aleaciones de 2% y 5.2% de Si.

Una vez que el par de difusión se encuentra en la prensa se lo pone dentro de un tubo de cuarzo y se le hace un tratamiento térmico de 90min a 550°C en un horno tubular. Al finalizar el tratamiento térmico se lo templea en agua sin romper el tubo.

En la Figura 6 se puede observar un esquema de un par de difusión.

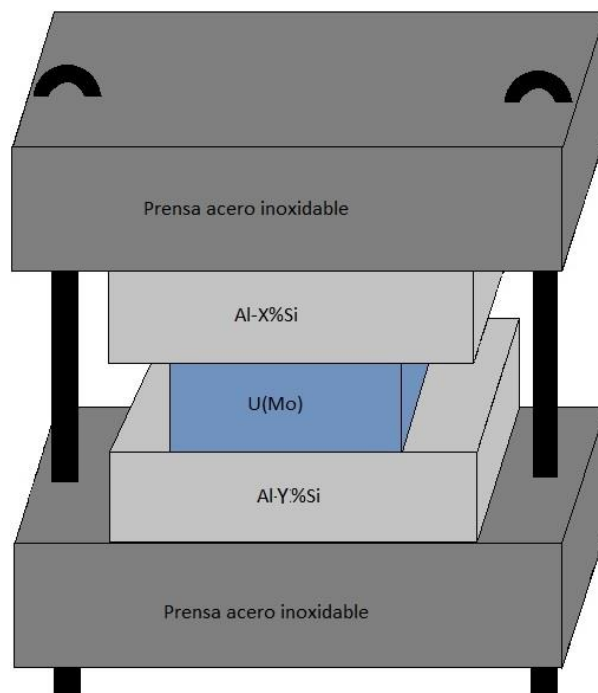


Figura 6: esquema de par de difusión en prensa de acero inoxidable.

Es importante destacar que todos los componentes de los pares fueron cortados y pulidos teniendo especial cuidado en que tuvieran el mismo tamaño y caras plano-paralelas entre sí. De este modo se puede considerar que la distribución de presiones, una vez armado el par, es semejante para todos los pares.

2.2. Equipamiento e instalaciones

2.2.1. Microscopía óptica (OM por sus siglas en inglés)

El examen de las muestras se realizó con un microscopio Olympus modelo BX60M con un aumento máximo de 500X.

Para la medición de los espesores de las ZI se utilizó el programa DP2-BSW, el cual permite, especificando el aumento con el que se está observando la muestra, trazar líneas, tanto en la visualización en vivo como en una foto obtenida con el mismo programa, y devuelve un valor de longitud como se muestra en la Figura 7. Se realizaron diez mediciones de longitudes tanto en las zonas más delgadas como en las más anchas de las ZI de cada muestra para sacar un promedio y poder compararlas entre sí.

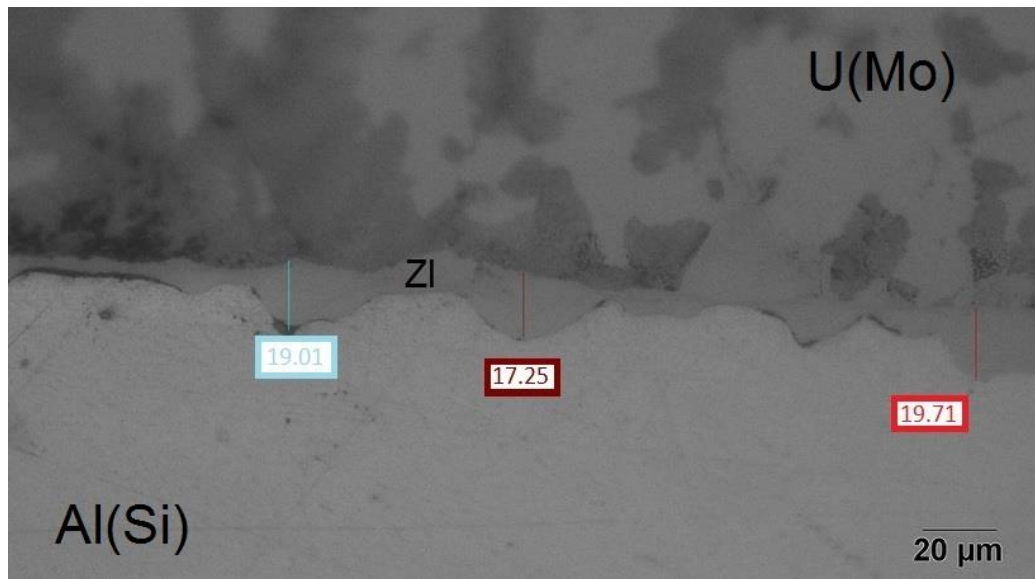


Figura 7: ejemplo de medición con el programa DP2-BSW a 500X.

2.2.2. Microscopía electrónica de barrido y espectroscopía dispersiva en energía (SEM y EDS respectivamente por sus siglas en inglés)

Para la caracterización de las muestras por esta técnica se utilizó un equipo modelo FEI Quanta 200 MK2 con EDAX incorporado. La tensión de aceleración utilizada fue de 25 kV y todos los datos se recolectaron del programa EDAX Génesis V6.04. Este equipo posee tres detectores distintos, uno de electrones secundarios, otro para electrones retrodifundidos y otro para fotones. Este último detector permite identificar los elementos presentes en el volumen de medición y hacer un análisis semicuantitativo de la concentración de dichos elementos, ya sea de forma puntual o en un área seleccionada. La ventaja de los electrones retrodifundidos con respecto a los secundarios es que permiten distinguir materiales por su número atómico (Z), haciendo ver más oscuro a los más livianos y más claros a medida que van aumentando en valor. El volumen, en el caso de los análisis puntuales, involucrado en cada medición es de $1\mu\text{m}^3$.

2.2.3. Laboratorio LABUAM

Buena parte de la práctica de esta tesina tuvo lugar en una instalación de Clase II del ciclo de combustible de la gerencia de materiales, más precisamente en el laboratorio de uranio del Centro Atómico Constituyentes (LABUAM). El mismo está destinado a la investigación y estudio de aplicaciones de materiales nucleares. En particular, en temas relacionados con el desarrollo de elementos combustibles de muy alta densidad destinados a la conversión a U de bajo enriquecimiento de los núcleos de los reactores de investigación y producción de radioisótopos.

Consideraciones de seguridad

La manipulación de U, para las cantidades permitidas en el laboratorio, no supone riesgo significativo de irradiación externa ya que este elemento es emisor α principalmente. Esto tiene como consecuencia que el principal riesgo a tener en cuenta para este elemento es la contaminación interna mediante su incorporación al organismo por fosas nasales, boca o heridas.

Para ingresar a la instalación es necesaria la utilización de elementos de protección personal, a saber: guantes de látex, guardapolvo y cubre zapatos. En caso de tener el pelo largo debe de recogerse. Al momento de ingresar al laboratorio el procedimiento de rutina tiene varias etapas, en un principio se ponen los guantes, el guardapolvo y luego los cubre zapatos. Los dos primeros se ponen en el área de ingreso mientras que los cubre zapatos nunca pueden estar en dicha zona, tienen que permanecer en la zona controlada y por ende se deben colocar en la misma.

El método de contención para tener bajo control la posibilidad de dispersión del U en el aire es la vía húmeda, la cual cumple dos funciones en la mayoría de los casos que son la de contener las partículas de U y la de refrigeración. Esta última función es importante tenerse en cuenta por su piroforicidad.

Para la preparación metalográfica de los pares de difusión se utiliza un desbaste mecánico con papeles esmeriles y luego paños embebidos en pasta de diamante, de distinta granulometría, lubricados con etilenglicol. Dado que estos dos procesos generan desprendimiento de material, resulta importante prestar especial atención con la contención de partículas. De estos dos procesos, sólo el primero de ellos genera riesgo de dispersión de partículas. Es por ello que durante el desbaste con papel esmeril se vuelca agua de manera periódica logrando que la muestra nunca se caliente y que las partículas queden en el líquido. Cuando se termina de utilizar un papel y es momento de pasar a la granulometría siguiente el papel anterior se remueve, enrolla y deja a un costado para que se escurra hasta que se termina de usar el equipo. Una vez finalizado el desbaste, los papeles esmeril, aún húmedos, son colocados en una bolsa la cual es rotulada con la fecha. En dicha bolsa también deben almacenarse cualquier otro residuo húmedo que se haya generado ese día en el laboratorio siguiendo la normativa del PNGRR (Programa Nacional de Gestión de Residuos Radiactivos), los residuos sólidos que se generan en la Instalación deben estar libres de humedad. Para esto la bolsa con residuos húmedos es colocada en la campana de extracción forzada para su posterior secado en forma controlada minimizando así la posibilidad de dispersión de uranio al aire.

La observación de las muestras al microscopio requiere de una limpieza detallada de las mismas. Los líquidos contaminados generados en este proceso son procesados a través de una cascada de filtración de dos etapas con el fin de no generar residuos líquidos. Los filtros que retienen el material radiactivo son secados, siguiendo el procedimiento explicado en el párrafo anterior, y descartados como residuo sólido.

Por último, al finalizar las tareas deben limpiarse adecuadamente las mesadas con el fin de evitar la acumulación de contaminación.

2.3. Preparación de las muestras para las técnicas utilizadas

2.3.1. Inclusión

Luego de los tratamientos térmicos, los pares de difusión fueron extraídos de sus respectivas prensas e incluidos en resina polimérica para su mejor manipuleo y para evitar la ruptura de la ZI durante los procesos de corte y pulido. En primer lugar se hizo dicha inclusión en un rectángulo de cartón de forma horizontal en donde se podían ver el par desde arriba para poder tener mejor visión del corte (Figura 8). Se cortaron transversalmente para tener en un plano las zonas de contacto Al(Si)-U(Mo)-Al(Si). Luego se incluyeron en un aro metálico en donde la muestra se coloca como se indica en la Figura 9.

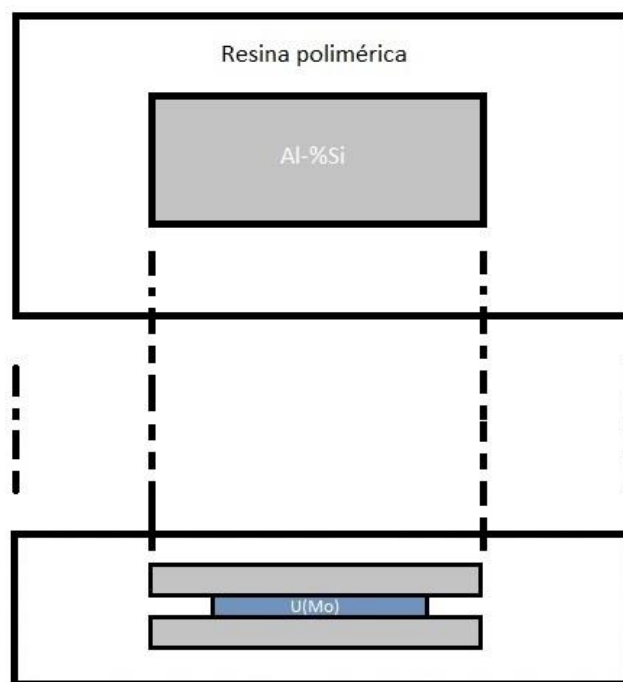


Figura 8: esquema de inclusión de pares de difusión en rectángulo de cartón.



Figura 9: par de difusión incluido en aro metálico.

2.3.2. SEM y EDS

Para el análisis de las muestras en el microscopio electrónico las mismas debieron ser metalizadas con oro, de espesor aproximado 5nm, para obtener la condición de conductividad eléctrica indispensable para esta técnica.

3. RESULTADOS

En esta sección se presentarán en detalle los resultados obtenidos para las muestras. Se reitera que para este trabajo de tesis se utilizaron las composiciones 0,6%, 2%, 5,2% y 7,1% de Si en Al.

Como consecuencia del tratamiento térmico ambas muestras desarrollaron dos ZI debida a la interdifusión entre el U(Mo) y las aleaciones de Al(Si). Además, la mayoría de los materiales de partida se vieron afectados en distintas formas.

3.1. Caracterización microestructural de los materiales de partida previo a la fabricación de los pares de difusión

3.1.1. U(Mo)

La caracterización microestructural se realizó previo al inicio de esta tesis por el grupo de trabajo mediante las técnicas de OM, SEM y XRD (difracción de rayos X por sus siglas en inglés). Se determinó que la estructura cristalina de la aleación U(Mo) corresponde a la fase γ U con precipitados distribuidos homogéneamente en la matriz correspondientes a carbonitruros de uranio (CNU) y UO_2 . Los primeros tienen un color gris claro mientras que los segundos uno más oscuro y se pueden observar en la Figura 10.

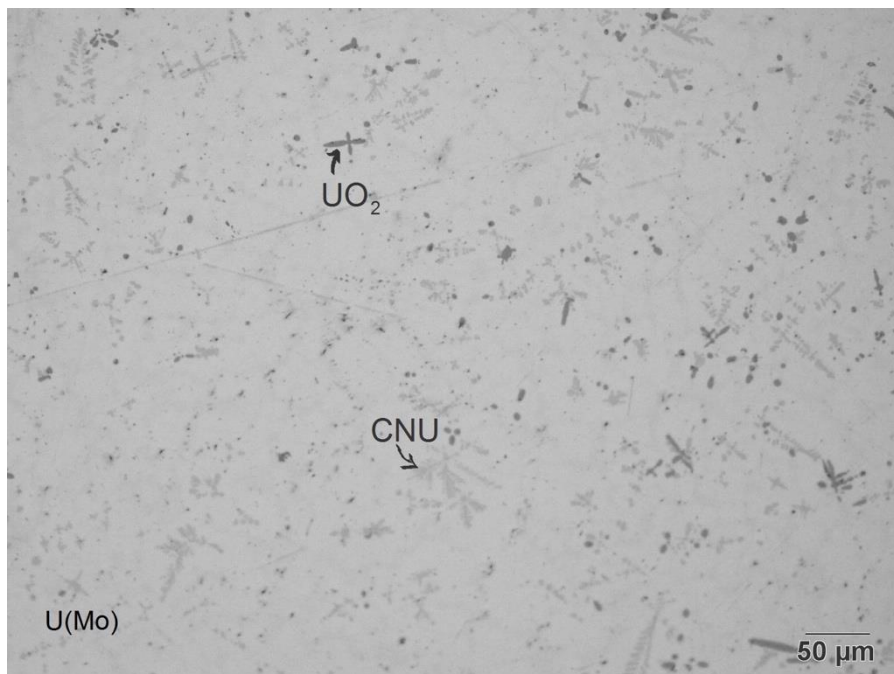


Figura 10: matriz de γ U y precipitados de CNU y UO_2 .

3.1.2. Aleaciones Al(Si)

A continuación se describirá la evolución microestructural de las aleaciones Al(Si) como consecuencia de los distintos procesos termomecánicos utilizados para su fabricación: fundición, laminación en caliente y tratamiento térmico final. Se describe una sola vez ya que se observa el mismo comportamiento en las tres muestras.

Luego del proceso de fundición, para las aleaciones de Al-2%Si, Al-5.2%Si, Al-7.1%Si se pudo observar una matriz monofásica de Al puro con morfología dendrítica y en los espacios interdendríticos regiones bifásicas formadas por Al y Si puros con morfología eutéctica. En estas tres aleaciones el proceso de laminación en caliente promovió la homogeneización del material manifestándose principalmente en la pérdida de la morfología dendrítica de la matriz de Al y la esferoidización de las bandas eutécticas correspondientes a Si puro.

Finalmente, luego del tratamiento térmico se ve como las dendritas desaparecen casi por completo y los precipitados de Si presentan una morfología de esferas bien separadas y dispersas homogéneamente en toda la matriz de Al.

En las Figuras 11, 12 y 13 se puede observar la microestructura de la aleación Al-7.1%Si en las tres instancias: AC, después de laminar y después del tratamiento térmico. Esta muestra es representativa del comportamiento de las tres aleaciones.

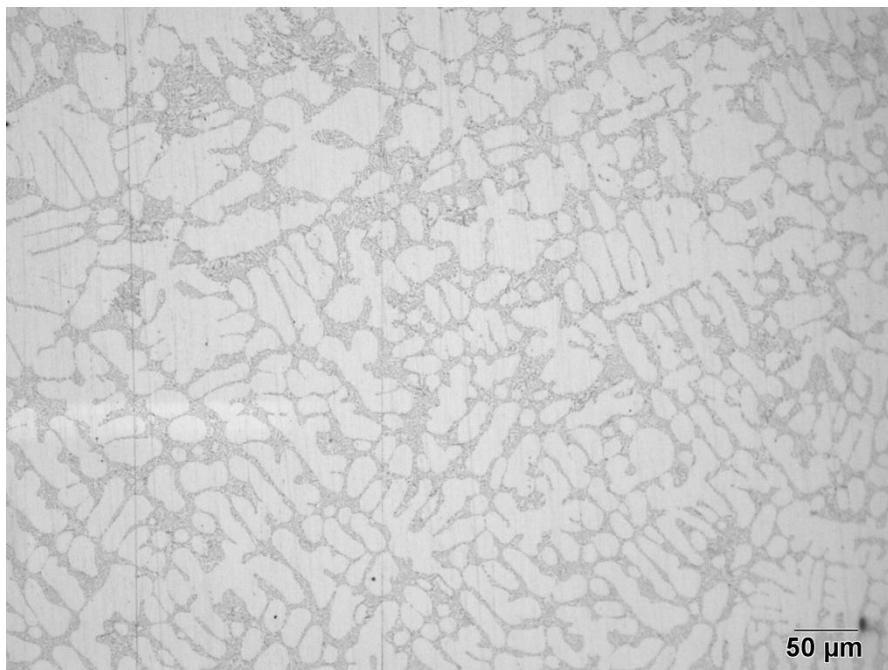


Figura 11: microestructura de aleación Al-7.1%Si AC.

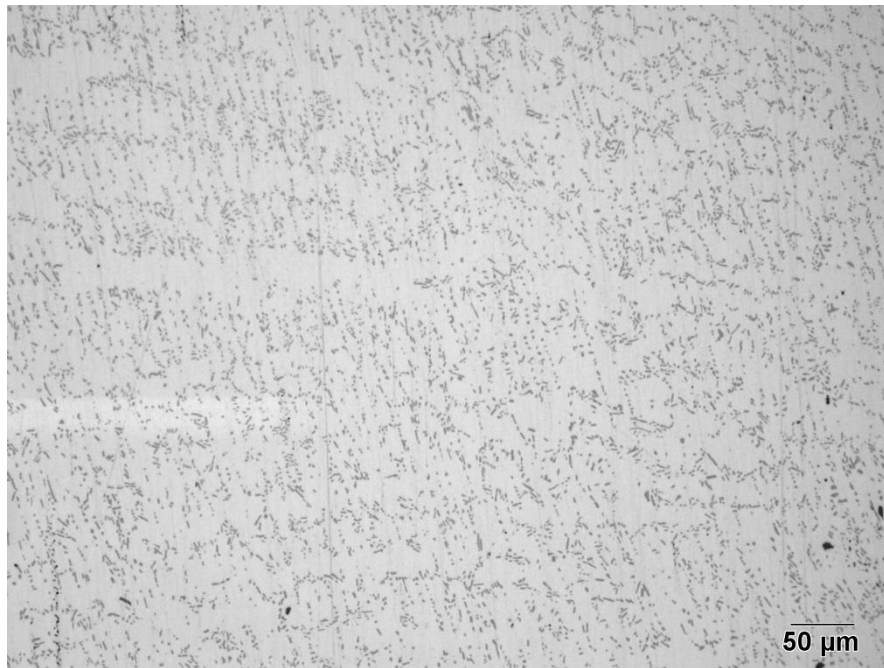


Figura 12: microestructura de la aleación Al-7.1%Si después del laminado en caliente.

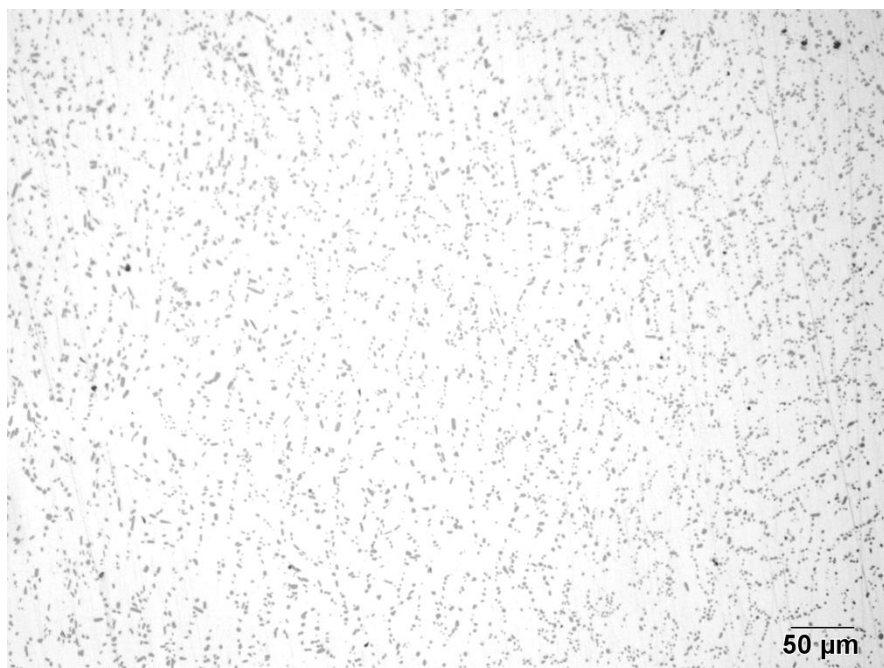


Figura 13: microestructura de la aleación Al-7.1%Si después del tratamiento térmico.

Con respecto a la cuarta aleación, Al-0.6%Si, no se pudieron apreciar cambios significativos a lo largo del proceso de fabricación. Esto se explica teniendo en cuenta que la concentración máxima de Si que acepta el Al en solución es del orden del 1% para las temperaturas involucradas en estos procesos (ver diagrama de equilibrio de fases en sección 1.3.). Por ende, sólo a partir de esa concentración se pueden observar precipitados de Si y concentraciones menores de este elemento se encuentran en solución sólida dentro de la matriz de Al.

3.2. Caracterización microestructural después del tratamiento térmico de interdifusión

3.2.1. U(Mo)

Como consecuencia del tratamiento térmico el U(Mo) presentó gran cantidad de zonas en las cuales la fase de partida de la aleación, $\gamma\text{U}(\text{Mo})$, se transformó mediante una descomposición del tipo celular con morfología laminar. Una de estas zonas puede observarse en la Figura 14.

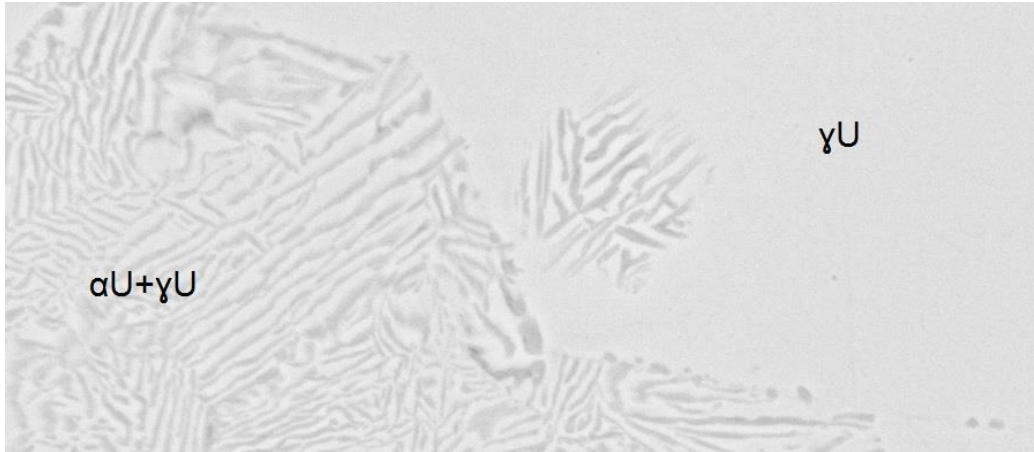


Figura 14: descomposición celular en el U(Mo). Zonas oscuras de $\alpha\text{U} + \gamma\text{U}$ y zonas claras de γU .

3.2.2. Aleaciones Al(Si)

Al-0.6%Si

No se vieron cambios significativos en la morfología de este componente lo cual es esperable de acuerdo a lo explicado en 3.1.2.

Al-2%Si

Algunos precipitados migraron hacia los bordes de grano pudiéndose observar líneas que los delimitan. También se puede ver una zona en donde no hay precipitados de Si (Figura 15) que se encuentra más cerca del U(Mo), a la cual se le llama zona libre de precipitados (ZLP).

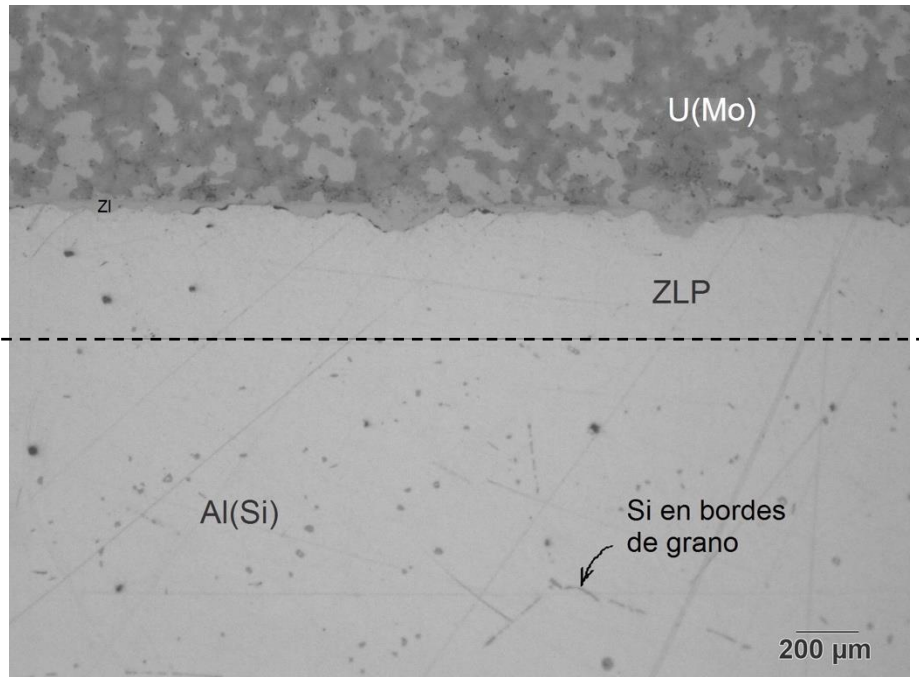


Figura 15: Par U(Mo)-Al-2%Si. Migración de Si a los bordes de grano y formación de ZLP.

Al-5.2%Si

Los precipitados cambiaron su forma de pequeñas esferas a placas pudiéndose apreciar, al igual que para la aleación anterior, en borde de grano del Al. También se puede apreciar una ZLP en las inmediaciones de la ZI del lado del Al como se muestra en la Figura 16.

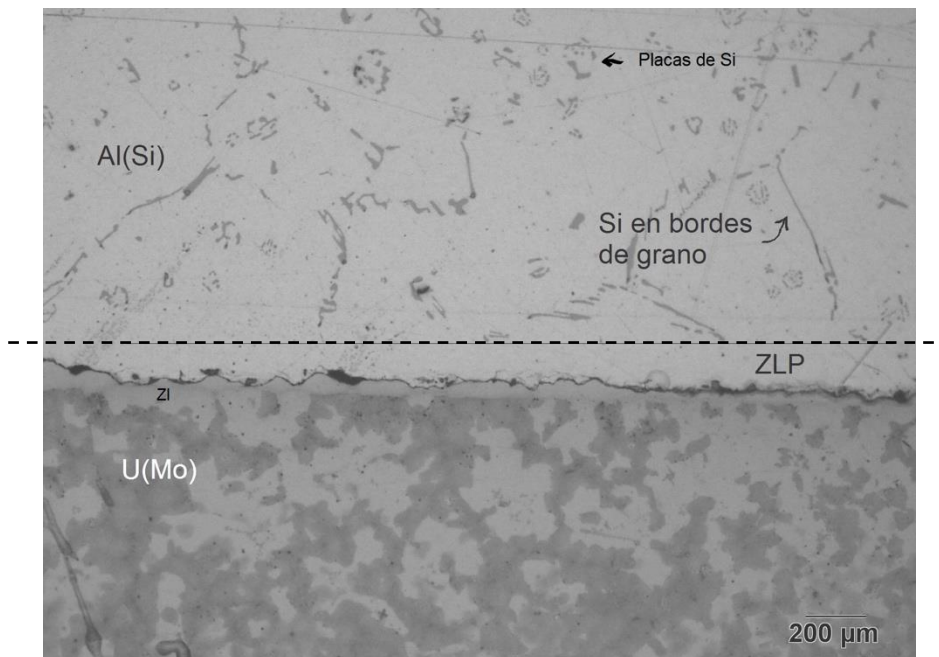


Figura 16: Par U(Mo)-Al-5.2%Si. Migración de Si a los bordes de grano y formación de ZLP.

Al-7.1%Si

Al igual que para las dos últimas aleaciones descritas, se pudo observar una ZLP en las cercanías de la ZI del lado del Al pero en este caso los precipitados no perdieron su forma esférica como se puede observar en la Figura 17.

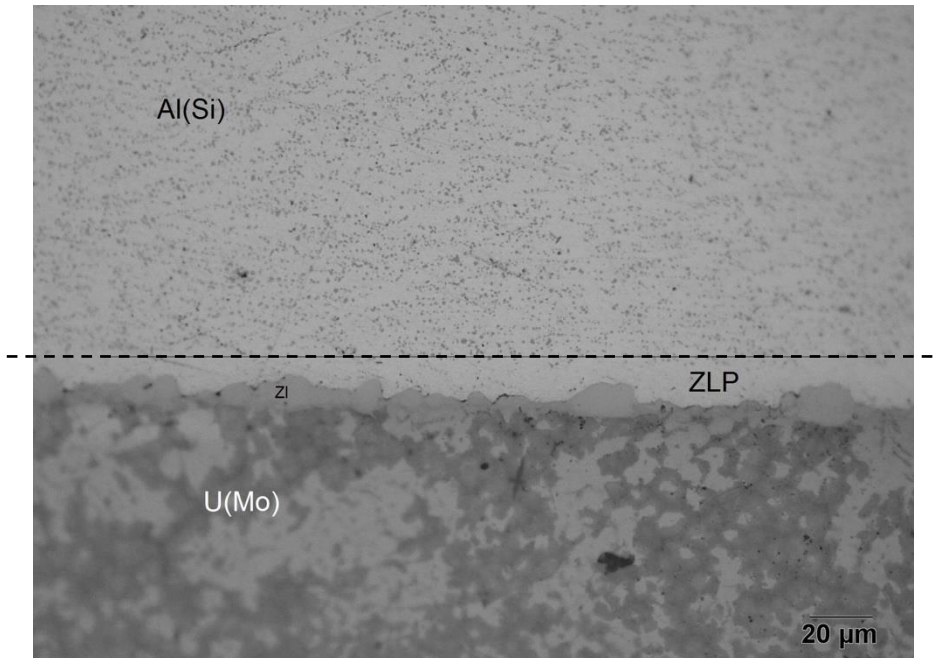


Figura 17: Par U(Mo)-Al-7.1%Si. Formación de ZLP.

3.3. Zonas de Interacción y Zona Libre de Precipitados

Para las ZI se pueden observar dos fenómenos marcados en todas las muestras. El primero es que en las zonas donde el U(Mo) no presenta descomposición, la banda que forma la ZI se puede apreciar como delgada, de crecimiento controlado, de una longitud pequeña o moderada, en cambio cuando el U(Mo) presenta descomposición la ZI que crece de forma poco controlada, abrupta. Y el segundo fenómeno es que éstas son, por lo menos, bifásicas.

Para las ZLP también se puede observar una tendencia y es que a medida que el Al contiene un porcentaje mayor de Si la zona libre de precipitados se vuelve más angosta. Siendo así la del Al con 2% de Si la más ancha, siguiendo con la de 5.2% y luego la de 7.1%. La muestra de 0.6% no presenta ZLP ya que, como se explicó anteriormente, por debajo del 1% en concentración el Si no precipita en Al.

3.3.1. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-0.6%Si

Entre el U(Mo) y el Al-0.6%Si se observó una ZI de ancho muy irregular, la cual puede ser descrita como una banda muy delgada, de

aproximadamente $1\mu\text{m}$, interrumpida longitudinalmente por regiones localizadas de crecimiento abrupto a las que denominaremos protuberancias, de ancho promedio máximo aproximado de $130\mu\text{m}$. Figuras 18 y 19.

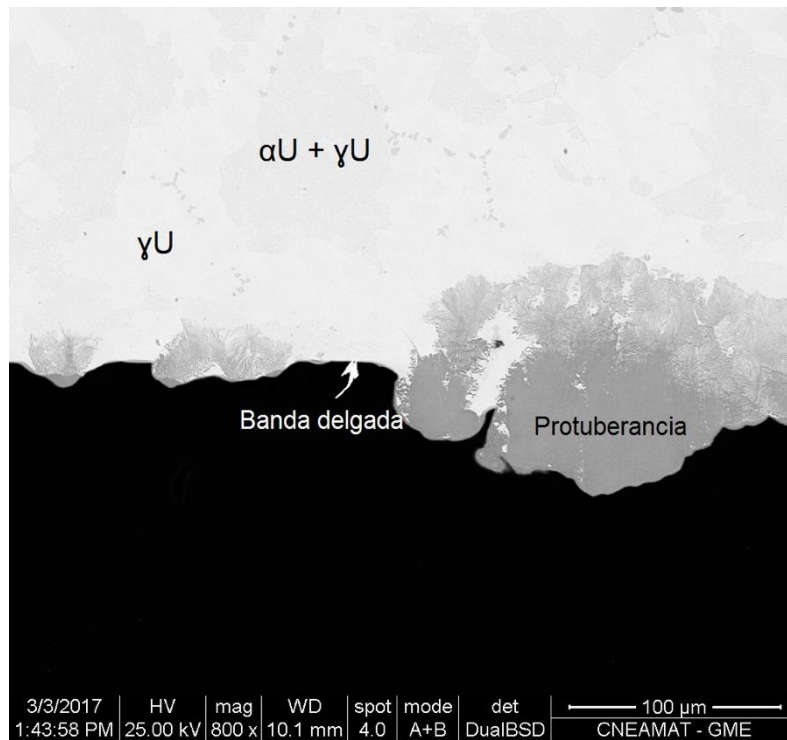


Figura 18: ZI par U(Mo) – Al-0.6%Si.

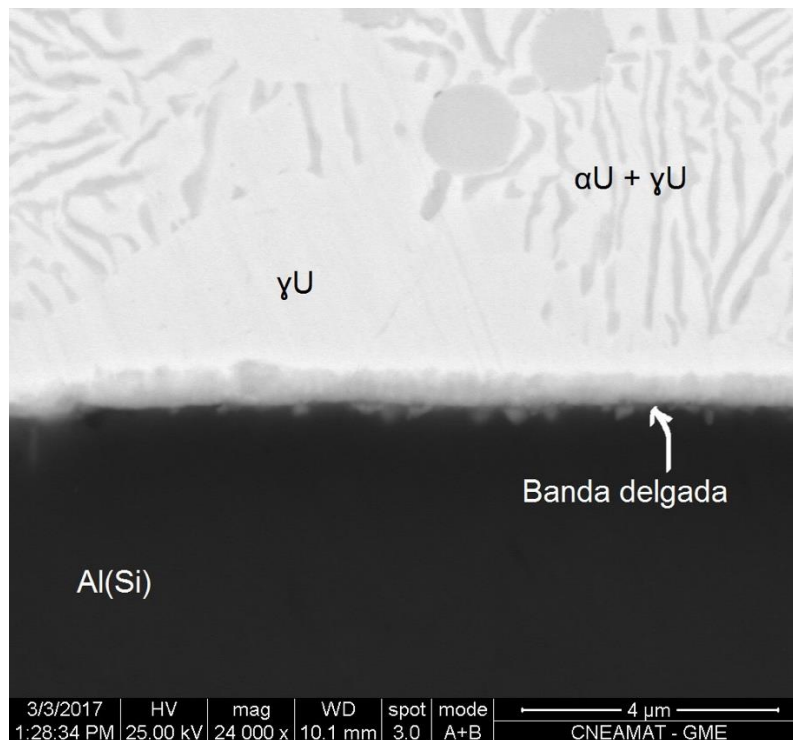


Figura 19: ZI en banda delgada par de difusión U(Mo) – Al-0.6%Si.

Observaciones a alta magnificación permitieron asociar la formación de las protuberancias con las regiones localizadas de descomposición dentro de la aleación U(Mo) mientras que la banda delgada es el resultado de la interdifusión entre la aleación Al(Si) y las regiones del U(Mo) que permanecen en fase γ U.

Dentro de las protuberancias que forman parte de la ZI se observaron al menos dos fases con una microestructura de bandas muy delgadas. Para evaluar la concentración de estas regiones se realizó un análisis semicuantitativo tomando una ventana en vez de hacerlo de forma puntual como se hizo en el caso de la banda delgada. En las Figuras 20 y 21 se pueden observar el punto y la ventana respectivamente y en las Tablas 2 y 3 las mediciones obtenidas para ambos casos.

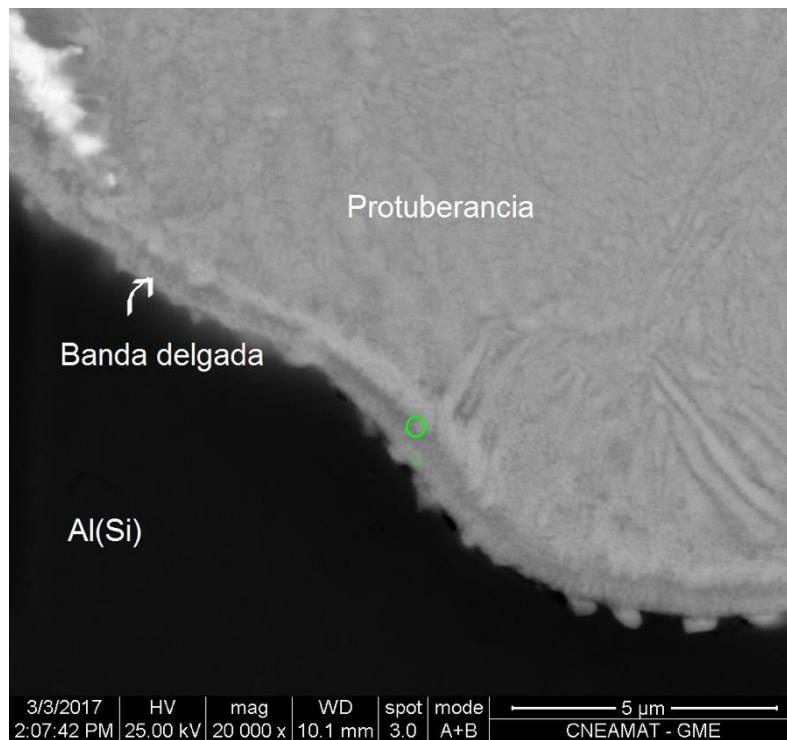


Figura 20: punto en el cual se realizó un análisis semicuantitativo en la banda delgada de la ZI de U(Mo) y Al-0.6%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	9.73	40.68
Si	2.98	11.96
Mo	8.49	9.99
U	78.8	37.36

Tabla 2: composición en peso y atómica del punto O.

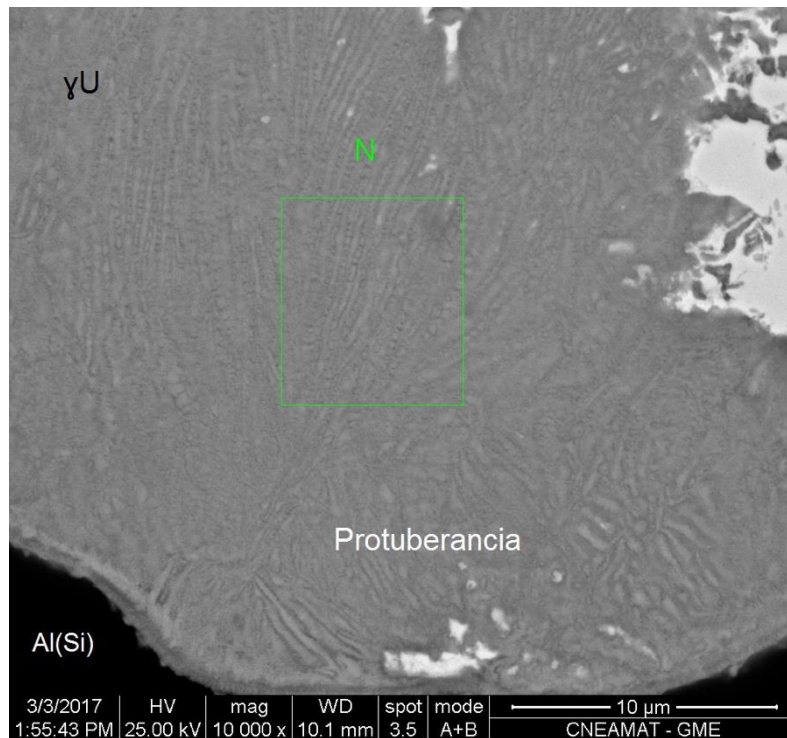


Figura 21: ventana en la cual se realizó el análisis semicuantitativo. Par de difusión U(Mo) – Al-0.6%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	37.02	82.16
Mo	5.35	3.34
U	57.63	14.5

Tabla 3: composición en peso y atómica de la ventana N.

Por último, y por lo ya explicado de la concentración mínima de Si en el Al necesaria para la aparición de precipitados, no se observó una ZLP.

3.3.2. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-2%Si

Del mismo modo que lo descrito anteriormente, esta ZI presentó un ancho inhomogéneo asociado a la condición cristalográfica del U(Mo) (Figura 22).

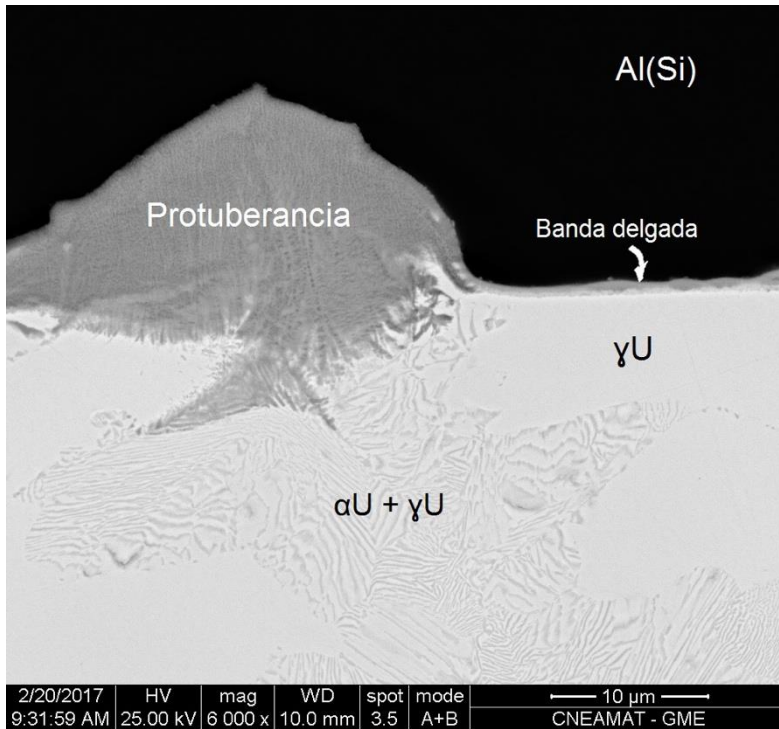


Figura 22: ZI del par de difusión U(Mo)-Al-2%Si con inhomogeneidad asociada a la condición cristalográfica del U(Mo).

Las zonas de menor crecimiento, asociadas a regiones en donde el U(Mo) no presenta descomposición, el ancho promedio aproximado medido es de $5\mu\text{m}$ mientras que en donde hay descomposición el valor crece a, aproximadamente $16\mu\text{m}$. El valor obtenido para la ZLP fue aproximadamente de $385\mu\text{m}$.

Mediante el SEM, utilizando electrones retrodifundidos se pudo observar la presencia de por lo menos dos fases en las regiones más anchas de la ZI. Se realizó un análisis semicuantitativo y se registraron tanto los puntos en los que se tomaban las mediciones como los resultados que arrojaron las mismas. Los puntos en los que se tomaron se pueden observar en las Figuras 23 y 24 y los resultados para cada punto en las Tablas 4, 5, 6 y 7.

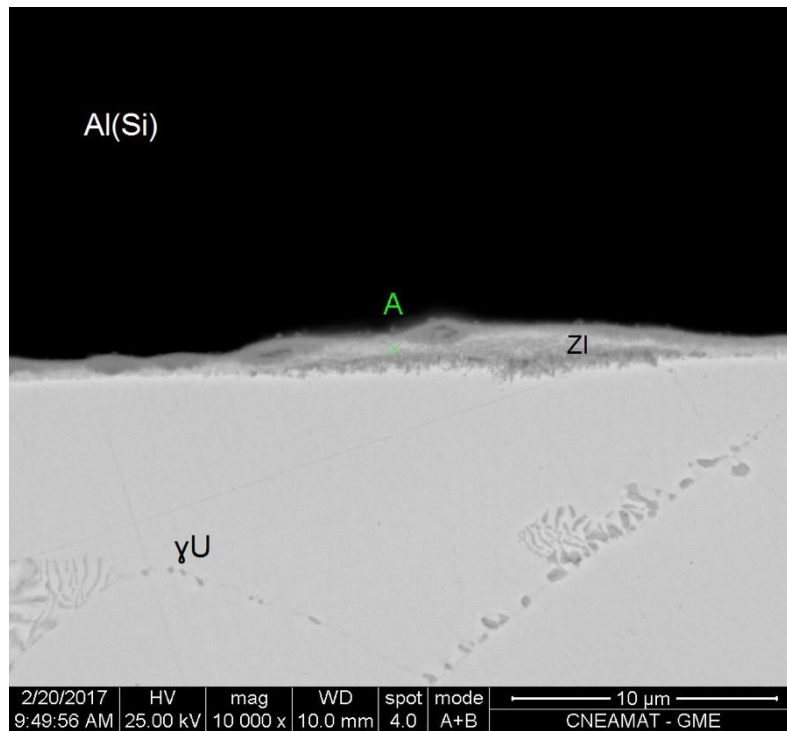


Figura 23: punto en el cual se realizó un análisis semicuantitativo en la banda delgada de la ZI de U(Mo) y Al-2%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	10.4	29.6
Si	15.22	41.62
Mo	9.99	8
U	64.39	20.77

Tabla 4: composición en peso y atómica del punto A.

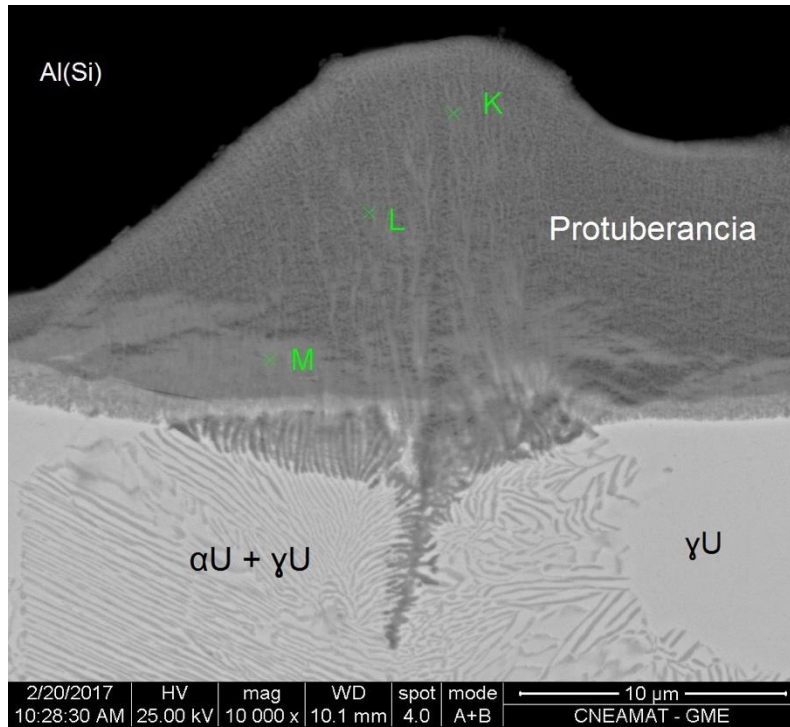


Figura 24: puntos en los cuales se realizó un análisis semicuantitativo para una protuberancia de la ZI de U(Mo) y Al-2%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	34.49	70.03
Si	7.67	14.97
Mo	4.97	2.84
U	52.87	12.17

Tabla 5: composición en peso y atómica del punto K.

Elemento	%Peso	%At
Al	32.46	68.46
Si	7.81	15.82
Mo	4.08	2.42
U	55.65	13.3

Tabla 6 composición en peso y atómica del punto L.

Elemento	%Peso	%At
Al	23.21	54.87
Si	10.95	24.87
Mo	6.59	4.38
U	59.25	15.88

Tabla 7: composición en peso y atómica del punto M.

3.3.3. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-5.2%Si

La ZI crecida entre estas aleaciones presentó un ancho bastante más uniforme que el descrito en las dos subsecciones anteriores. Sin embargo, y en concordancia con lo ya descrito, las regiones de la misma que presentan mayor espesor se corresponden con regiones de descomposición del U(Mo) (Figura 25). Se puede observar que la zona en donde el U(Mo) no presenta descomposición la ZI mide aproximadamente $9\mu\text{m}$ mientras que en donde hay descomposición ese valor crece a $15\mu\text{m}$. El valor promedio obtenido para la ZLP es de $140\mu\text{m}$.

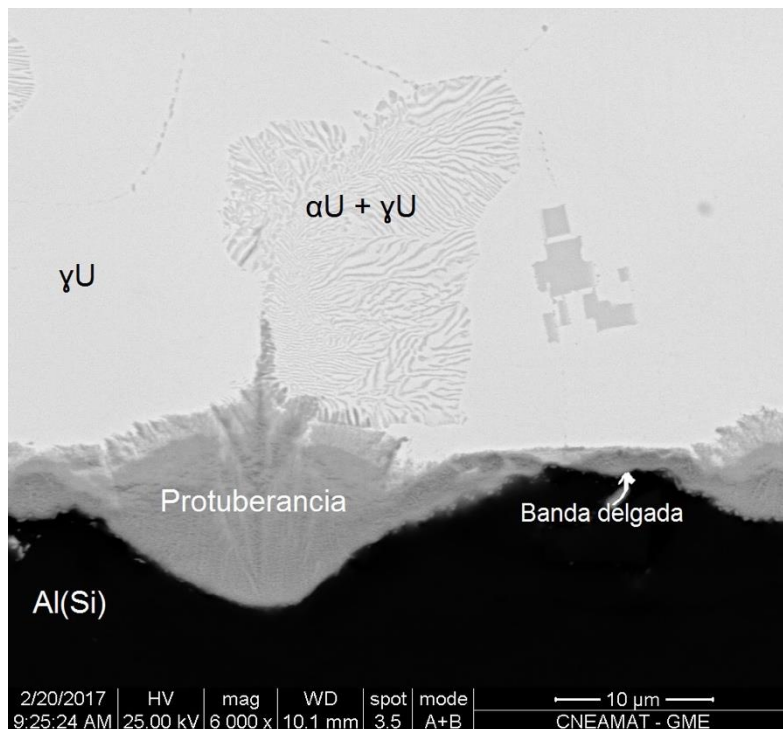


Figura 25: ZI del par de difusión U(Mo)-Al-5.2%Si con inhomogeneidad asociada a la condición cristalográfica del U(Mo).

Se realiza el mismo procedimiento que para la ZI con 2% de Si. Los puntos de medición y las concentraciones que se obtuvieron con el EDAX son los que se observan en las Figuras 26 y 27 y las Tablas 8, 9, 10 y 11 respectivamente.

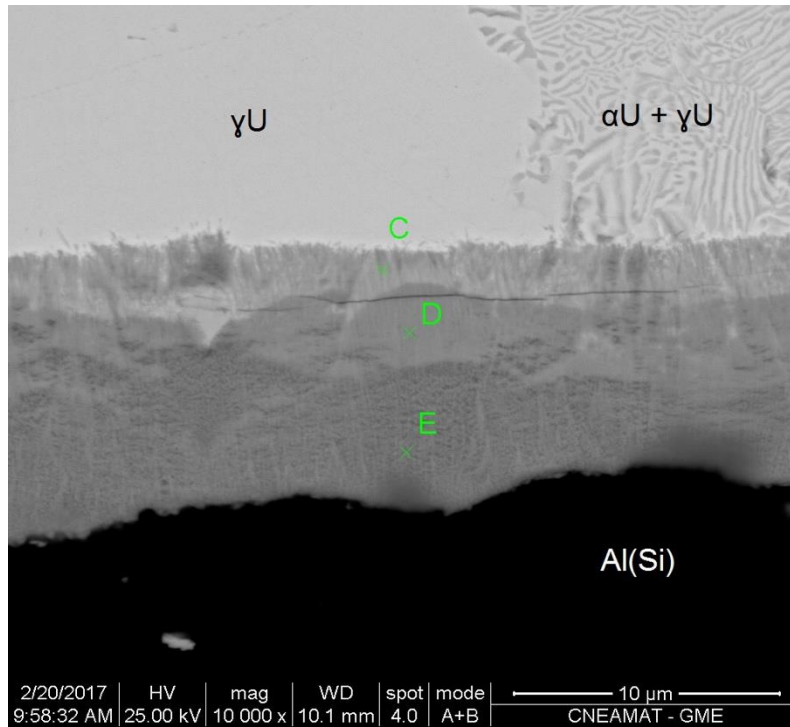


Figura 26: puntos en los cuales se realizó un análisis semicuantitativo para una banda delgada de la ZI de U(Mo) y Al-5.2%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	9.02	25.68
Si	17.35	47.47
Mo	6.42	5.14
U	67.22	21.7

Tabla 8: composición en peso y atómica del punto C.

Elemento	%Peso	%At
Al	23.64	56.53
Si	9.98	22.93
Mo	6.35	4.27
U	60.03	16.27

Tabla 9: composición en peso y atómica del punto D.

Elemento	%Peso	%At
Al	35.47	70.11
Si	7.97	15.14
Mo	6.27	3.49
U	50.29	11.27

Tabla 10: composición en peso y atómica del punto E.

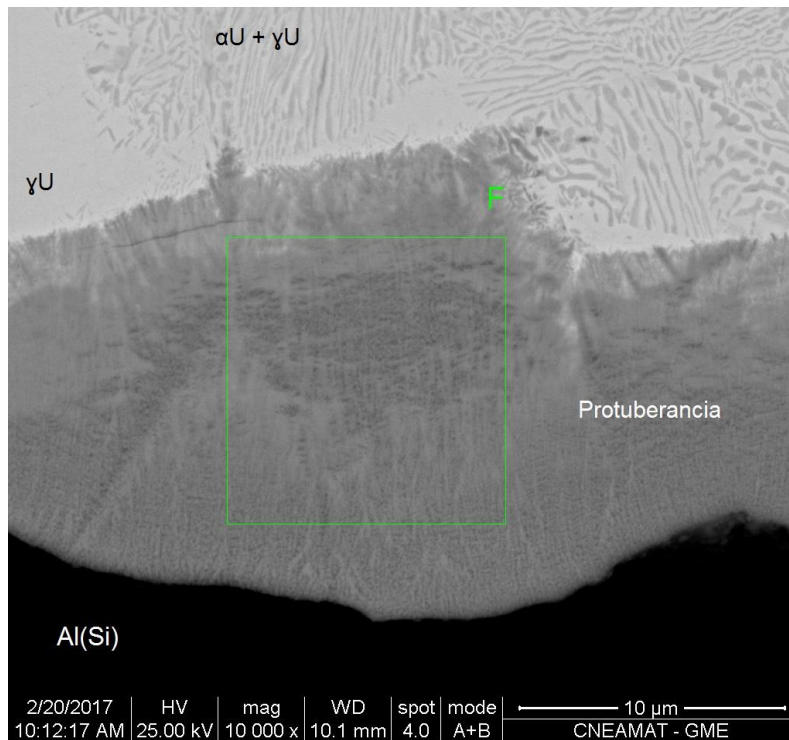


Figura 27: ventana en la cual se realizó un análisis semicuantitativo para una protuberancia de la ZI de U(Mo) y Al-5.2%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	30.67	67.03
Si	7.49	15.73
Mo	5.21	3.2
U	56.63	14.03

Tabla 11: composición en peso y atómica del punto C.

3.3.4. ZI crecida por interdifusión entre U(Mo) y Al-7.1%Si

Entre estas aleaciones se puede observar una ZI con características muy similares a las descritas en la sección anterior. Las regiones de la ZI contiguas a sectores donde el U(Mo) no presenta descomposición tienen un ancho aproximado de 12μm mientras que en donde hay descomposición ese valor crece a 26μm. Y para la ZLP se midió un ancho de 30μm.

Para determinar los valores de concentración se realiza el mismo procedimiento que para la ZI con 2% y 5.2% de Si midiendo tres puntos atravesando la ZI en forma perpendicular. Los puntos de medición y las concentraciones obtenidas son los que se observan en las Figuras 28 y 29 y las Tablas 12, 13,14 y 15 respectivamente.

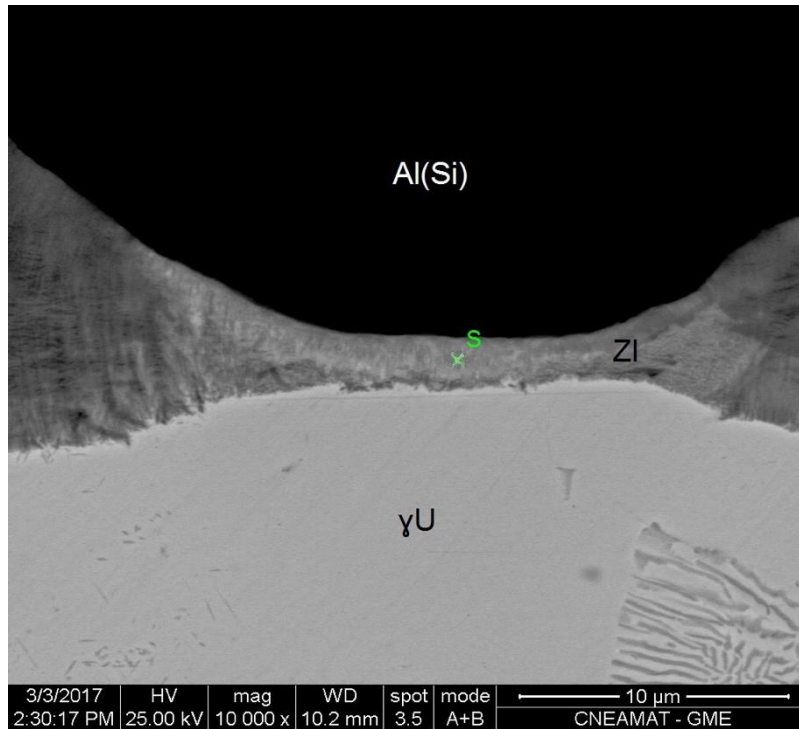


Figura 28: punto en el cual se realizó un análisis semicuantitativo para una banda delgada de la ZI de U(Mo) y Al-7.1%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	5.93	19.77
Si	13.73	44.02
Mo	10.41	9.77
U	69.93	26.45

Tabla 12: composición en peso y atómica del punto S.

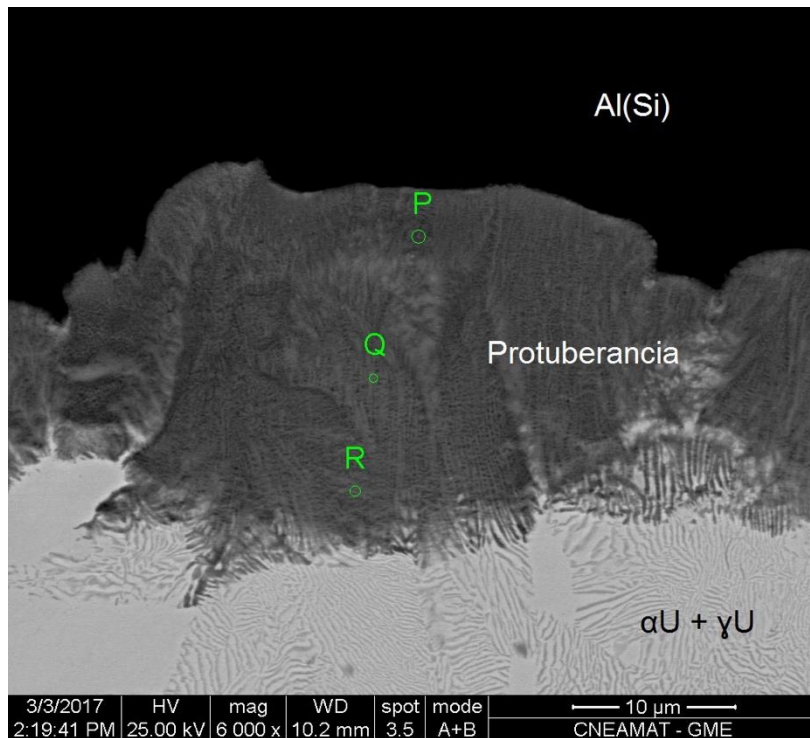


Figura 29: puntos en los cuales se realizó un análisis semicuantitativo para una protuberancia de la ZI de U(Mo) y Al-7.1%Si.

Elemento	%Peso	%At
Al	35.17	70.59
Si	7.41	14.29
Mo	6.11	3.45
U	51.32	11.68

Tabla 13: composición en peso y atómica del punto P.

Elemento	%Peso	%At
Al	31.8	66.8
Si	8.64	17.43
Mo	4.49	2.65
U	55.07	13.11

Tabla 14: composición en peso y atómica del punto Q.

Elemento	%Peso	%At
Al	31.36	68.33
Si	7.07	14.8
Mo	4.56	2.8
U	57.01	14.08

Tabla 15: composición en peso y atómica del punto R.

En la Tabla 16 se resumen todos los valores de los mínimos (o zonas de banda delgada) y máximos (o protuberancias) de la ZI y la ZLP.

% de Si	Banda delgada [μm]	Protuberancia [μm]	ZLP [μm]
0.6	1	130	-
2	5	16	385
5.2	9	15	140
7.1	12	26	30

Tabla 16: resumen de medidas de las ZI y ZLP.

4. DISCUSIÓN

El objetivo de esta tesina es la caracterización de la ZI crecida por interdifusión entre la aleación U-7% en peso Mo y cuatro aleaciones de Al(Si) con concentraciones de 0.6, 2, 5.2 y 7.1 %de Si.

Es este capítulo se discutirán los resultados presentados en el capítulo anterior haciendo hincapié en las características morfológicas y de concentración de las cuatro zonas de interacción en función de la concentración de Si en las aleaciones de Al(Si).

En esta tesina se analizarán y relacionarán los resultados obtenidos con los de otras investigaciones realizadas en CNEA, en donde se utilizaron aleaciones comerciales base Al con concentraciones de Si iguales a algunas de las presentadas en esta tesina. Además también se analizarán semejanzas y diferencias con resultados ya obtenidos por el grupo de trabajo en mini placas combustibles fabricadas por la planta de fabricación de elementos combustibles de CNEA, ECRI, utilizando concentraciones de Si en la matriz de Al iguales a algunas de las aleaciones de esta tesina.

4.1. Comparación de las ZI crecidas por interdifusión entre la aleación U(Mo) y las aleaciones Al(Si).

Con respecto a la morfología de las ZI, una característica común a todas las muestras fue la inhomogeneidad en el ancho de la ZI a lo largo de la interfaz. Dentro de todas las ZI se pudieron identificar regiones a las que se denominaron “bandas delgadas” y otras a las que se denominaron “ensanchamientos o protuberancias”. En todos los casos se pudo observar que los ensanchamientos de las ZI están asociados espacialmente a regiones con descomposición celular dentro de la aleación U(Mo).

A continuación se presenta nuevamente en esta sección la Tabla 16 con el fin de simplificar al lector la interpretación de los siguientes párrafos.

% de Si	Banda delgada [μm]	Protuberancia [μm]	ZLP [μm]
0.6	1	130	-
2	5	16	385
5.2	9	15	140
7.1	12	26	30

Tabla 16: resumen de medidas de las ZI y ZLP.

Al comparar la diferencia entre los valores de tamaño de la “banda delgada” y de las “protuberancias”, rápidamente se observa que esta diferencia disminuye con el incremento de porcentaje de Si en la aleación Al(Si). En este sentido, también se observó que el tamaño de las bandas delgadas aumenta con la concentración de Si. Este comportamiento no es directamente extrapolable al tamaño de las protuberancias aunque sí se observa que para la aleación Al-0.6% Si ese tamaño es muy superior que

para las otras tres aleaciones marcando una posible tendencia contraria a la observada para las bandas delgadas. Probablemente esto pueda explicarse teniendo en cuenta la condición en la que se encuentra el Si en la aleación, i.e. solución sólida vs. precipitados, pero se requeriría un estudio más detallado el cual trasciende el objetivo de esta tesina.

Con respecto a la ZLP pudo observarse que su tamaño aumenta a medida que la concentración de Si en la aleación Al(Si) disminuye. Esto queda demostrado en la Figura 30 la cual grafica la variación del espesor de la ZLP con el porcentaje de Si.

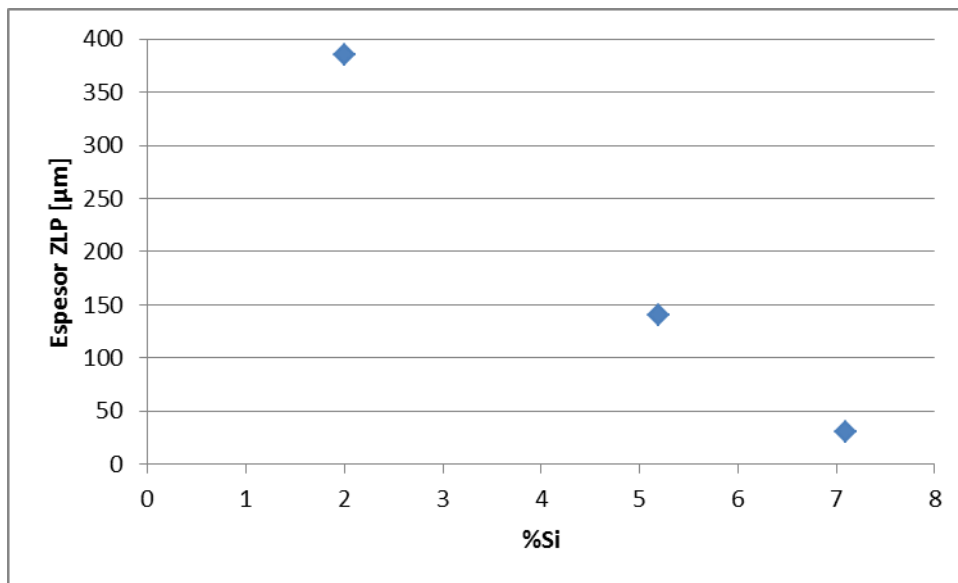


Figura 30: espesor ZLP vs %Si en aleación Al(Si).

En relación a las mediciones de concentración, también es posible mencionar dos comportamientos semejantes en todas las muestras. En primer lugar pudo observarse que las determinaciones de concentración de Si realizadas en las bandas delgadas resultó muy superior al valor nominal de concentración de este elemento en la aleación Al(Si). En segundo lugar, la concentración de Si dentro de la banda delgada resulta superior al medido en los ensanchamientos o protuberancias para cada una de las ZI.

En los trabajos [1][11][12], se presentan resultados obtenidos en pares de difusión fabricados con el mismo procedimiento utilizado en esta tesina pero utilizando aleaciones comerciales de Al(Si). Estas aleaciones son AA 356, AA 5052 y AA 6061 las cuales tienen concentraciones de Si de 7.1%, 5.2% y 0.6% respectivamente. A pesar de que estas aleaciones comerciales poseen otros elementos como aleantes, además del Si, no se observan diferencias significativas entre los resultados presentados en dichos trabajos con los de esta tesina. Esto permite concluir que las tendencias o comportamientos expresados en los párrafos anteriores, y también en [1][11][12] son consecuencia, principalmente, de la presencia de Si no habiendo mayor influencia de los otros aleantes.

4.2. Comparación con resultados obtenidos en miniplacas combustibles.

En el marco de una investigación y desarrollo con combustibles de alta densidad de U(Mo), el personal de la planta ECRI (GCCN) y de la Gcia. Materiales (GAEN), realizan un trabajo conjunto para desarrollar y estudiar el proceso de fabricación de miniplacas combustibles de U(Mo) disperso en matriz de Al-Si. El objetivo principal consiste en lograr que, como consecuencia del proceso de fabricación, crezca por interdifusión alrededor de todas las partículas de U(Mo), una ZI de espesor uniforme formada por fases ricas en Si. Las miniplacas se fabrican utilizando la metodología marco-tapa la cual incluye las siguientes etapas: fabricación de compactos, soldadura TIG perimetral del conjunto marco-tapa con esquinas cerradas, laminación en caliente y tratamiento térmico final + laminación en frío. Como partícula portadora de U se utilizaron partículas atomizadas de U-7% en peso de Mo y, para formar la matriz, se utilizaron partículas de Al puro y Si puro.

Todos los resultados obtenidos se presentan en [8] [9] [10]. De todos los resultados presentados en dichos informes, se rescatan en esta sección aquéllos que permiten realizar una comparación con los de esta tesina:

Al analizar la miniplaca fabricada con Al puro en la matriz, se observó que en ese caso la ZI se forma únicamente en muy pocas partículas de U(Mo) pero desarrolla un gran tamaño, llegando en algunos casos a ocupar todo el volumen de la partícula. La existencia de la ZI está unívocamente asociada a la presencia de un alto grado de descomposición de la fase γ U(Mo) dentro de la partícula (Ver Figura 31).

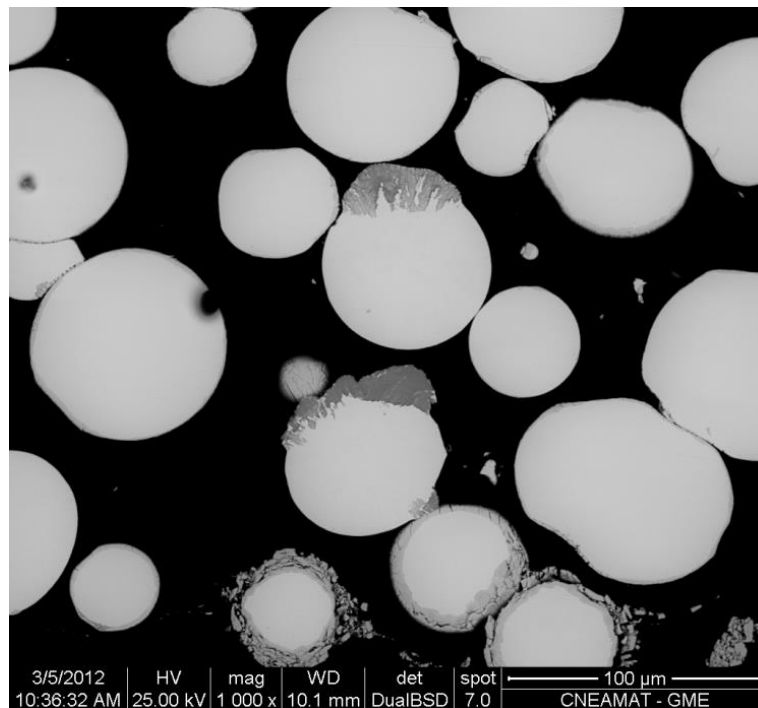


Figura 31: protuberancia en partículas de U(Mo) en miniplacas combustibles con matriz de Al puro.

En las miniplacas con matriz Al-4%Si casi la totalidad de las partículas de U(Mo) se encuentran recubiertas por una ZI homogénea en espesor formada por fases que contienen Si. Las características morfológicas de esa ZI resultan prácticamente independientes del estado cristalográfico de la partícula de U(Mo). Esta observación resulta relevante ya que, el grado de descomposición de la fase γ U no puede ser controlado durante el proceso de fabricación de la miniplaca. (Ver Figura 32)

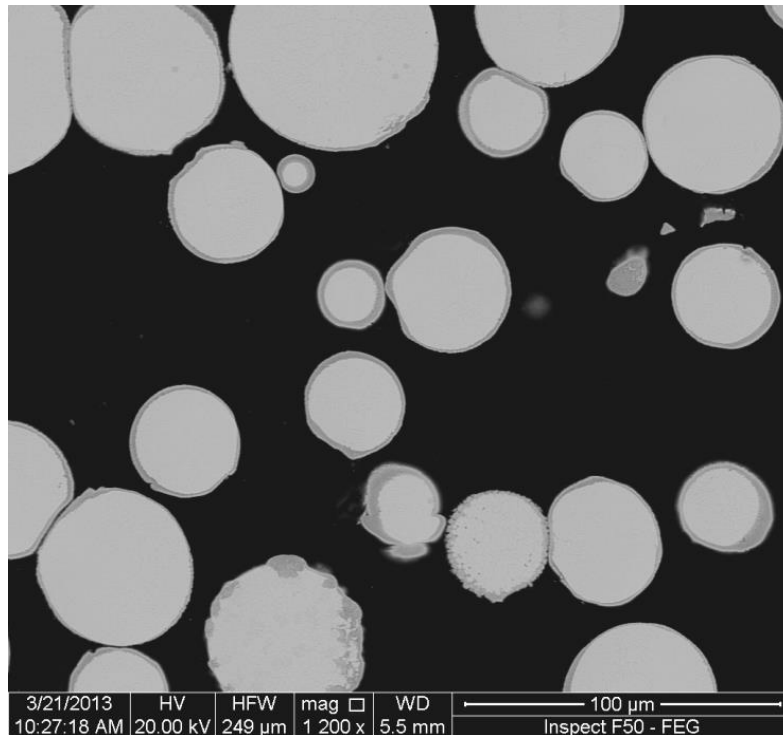


Figura 32: partículas que presentan ZI con crecimiento homogéneo en espesor en miniplacas combustibles con matriz de Al-4%Si.

Es de destacar que los resultados obtenidos en esta tesina, en relación a las características morfológicas de la ZI tanto ante el agregado de Si en la matriz como a los cambios cristalográficos del U(Mo), muestran el mismo comportamiento que el obtenido en las miniplacas.

El hecho de que los resultados provenientes de investigaciones experimentales con pares de difusión puedan ser extrapolados a desarrollos de nuevos elementos combustibles resulta sumamente alentador en el marco de la calificación de aleaciones combustibles de alta densidad.

5. CONCLUSIONES Y TRABAJOS A FUTURO

5.1. Conclusiones

Teniendo en cuenta todo lo expuesto anteriormente se concluye que:

- a) El agregado de Si al Al que conforma la matriz tiene como consecuencia dos efectos muy marcados. El primero de ellos es que hace que la ZI crezca de una manera más controlada, sin ensanchamientos abruptos. La diferencia entre los valores mínimos y máximos en su espesor son significativamente menores. Y el segundo efecto que provoca es el poder independizarse, al momento de la fabricación de un EC, del porcentaje de descomposición que tenga el U, ya que por más que la ZI se encuentre contigua a una zona que presente descomposición el cambio de volumen será poco significativo en comparación al que tendría sin Si.
- b) La ZLP decrece en espesor a medida que el Si disponible en el Al es mayor.
- c) El hecho de que los resultados de esta tesina con respecto al crecimiento y la morfología de la ZI concuerde con el obtenido para las miniplacas combustibles resulta sumamente positivo ya que hace pensar que en un futuro se puedan fabricar EECC con mayores densidades de uranio que las de hoy en día y, utilizando estos métodos de análisis, se puedan solucionar posibles inconvenientes que se presenten en el proceso de fabricación.

5.2. Trabajos a futuro

- Identificación de la estructura cristalina de las fases que conforman las ZI.
- Determinaciones más exhaustivas de las concentraciones que se obtuvieron en esta tesina.
- Completar los estudios para las aleaciones restantes.

6. BIBLIOGRAFÍA

[1].- Tesis doctoral “Interdifusión entre aleaciones de U-Mo y Al. Ensayo de irradiación” Dra M. Mirandou. Inst. de Tecnología J. Sabato. 10-15. 2011

[2].- Proyecto de inversión RA10, GAEN, Comunicación interna.

[3].- <http://www.cnea.gov.ar>

[4].- D. M. Wachs, RERTR Fuel Development and Qualification Plan, INL/EXT – 05-01017 Rev. 3, Enero, 2007.

[5].- J. Snelgrove, G. Hofman, M. Mayer, C. Trybus, T. Wiencek, Nuclear Engineering and Design 178 (1997) pp 119-126. PII S0029-5493(97)00217-3.

[6].- G. Hofman Y. Kim, M. Finlay, J. Snelgrove, S. Hayes, M. Mayer, C. Clark, F. Huet, 8th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), 21-24 de Marzo, 2004, Munich, Alemania.
<http://www.euronuclear.org/meetings/rrfm2006>

[7].- G. Hofman, M. Finlay y Y. Kim, RERTR-2004 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, 7-12 de Noviembre, 2004, Viena, Austria. <http://www.rertr.anl.gov>.

[8].- S. Aricó, S. Balart, M. Mirandou, Estado de avance en la caracterización de núcleos de miniplacas combustibles U(Mo) en matriz de Al-Si y Al puro, 25 de octubre, 2012, Argentina.

[9].- S. Aricó, S. Balart, M. Mirandou, Caracterización de núcleos de miniplacas combustibles U(Mo) en matriz de Al-Si. Primera etapa. Matriz de Al puro y Al-2%Si, 10 de agosto, 2012, Argentina.

[10].- M. Mirandou, Caracterización de núcleos de miniplacas combustibles U(Mo) en matriz de Al-Si. Resumen final de la primera etapa, 11 de Julio, 2014, Argentina.

[11].- M. Mirandou, S. Aricó, S. Balart, L. Gribaudo, Characterization of the interaction layer in diffusion couples U-7 wt%Mo/Al 6061 alloy at 550°C and 340°C. Effect of the γ U(Mo) cellular decomposition, 15 de enero, 2009, Argentina.

[12].- M. Mirandou, S. Aricó, M. Rosenbusch, M. Ortiz, S. Balart, L. Gribaudo, Characterization of the interaction layer grown by interdifusión between U-7 wt%Mo and Al A356 alloy at 550 and 340°C, 10 de marzo, 2008, Argentina.